

M. Weis

Mainx

1979



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41552619_0066

Ladungs-, Isotopen- und Spinverteilung
der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ im Gebiet um
 $A \approx 100$

Dissertation
zur Erlangung des Grades
'Doktor der Naturwissenschaft'

am Fachbereich Chemie
der Johannes Gutenberg Universität Mainz

Michael Weis
geb. in Kaiserslautern

Mainz, im Januar 1979



Dekan:

Prof. Dr. K. Beyermann

1. Berichterstatter:

Prof. Dr. H. O. Denschlag

2. Berichterstatter:

Prof. Dr. G. Herrmann

Tag der mündlichen Prüfung:

9. Februar 1979

Inhalt

1.	<u>Einleitung und Problemstellung</u>	1
2.	<u>Experimenteller Teil</u>	5
2.1.	Bestrahlungseinrichtungen und Transportsysteme	5
2.2.	Chemische Trennverfahren	6
2.2.1	Grundprinzip	6
2.2.2	Nb-Chemie	7
2.2.3	Zr-Chemie	11
2.2.4	Aufarbeitung der Filtrate auf Mo und Tc	11
2.3.	Automatische Trennapparaturen	12
2.3.1	Automatische Nb-Abtrennung	13
2.3.2	Automatische Zr-Abtrennung	17
2.3.3	Variante zur Erreichung sehr kurzer Verzögerungszeiten	19
2.4.	Bestimmung des Trennzeitpunktes	22
2.5.	Instrumentation	25
2.6.	Datenauswertung	29
2.6.1	γ -Spektren	29
2.6.2	Zerfallskurvenanalysen	30
2.6.3	Fehlerrechnung	30
3.	<u>Spaltausbeuten der Isobarenkette $^{99}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$ in der Reaktion $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$</u>	32
3.1.	Bisherige experimentelle Situation	32
3.2.	Ausbeutemessungen	33
3.3.	Primäre Speisung von $^{99\text{m}}\text{Nb}$	42
3.4.	Primäre Hochspinausbeute von ^{99}Nb und Verzweungsverhältnis im β^- -Zerfall von ^{99}Zr	45
3.5.	Ergänzende Messungen	51
3.6.	Diskussion	53

4.	<u>Spaltausbeuten der Isobarenketten 101 - 105</u> <u>in der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$</u>	59
4.1.	Bisherige experimentelle Situation	59
4.2.	Meßprinzip und vorbereitende Versuche	60
4.3.	Ausbeuten der Kette A = 101	63
4.4.	Ausbeuten der Kette A = 102	68
4.5.	Ausbeuten und Isomerenverhältnis der Kette 104	71
4.6.	Ausbeuten der Kette A = 105	75
5.	<u>Spaltausbeuten der Isobarenketten 96 - 99</u> <u>in der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$</u>	78
5.1.	Ausbeuten von ^{97}Nb , $^{98}\text{Nb}(4^-)$ und $^{99\text{m}}\text{Nb}$	78
5.1.1	Bisherige experimentelle Situation	78
5.1.2	Meßprinzip, Auswertung und Ergebnisse	80
5.2.	Die Ausbeute von $^{97\text{m}}\text{Nb}$	94
5.3.	Die Ausbeute des ^{96}Nb	98
5.4.	Diskussion	102
6.	<u>Zusammenfassende Diskussion der Meßergebnisse</u>	105
6.1.	Vergleich mit den Ergebnissen physikalischer Methoden	105
6.2.	Ladungsverteilung	108
6.2.1	Analyse der Ladungsverteilungsfunktion	108
6.2.2	UCD-Modell	114
6.3.	Isotopenverteilung	121
6.3.1	Beschreibung und Ergebnisse	121
6.3.2	Vergleich der Methoden Ladungs-/Isotopenverteilung	128
6.3.3	Zusammenhänge $\Delta Z - \Delta A$	130
6.3.4	Effekte der Protonenstrukturen	132
6.3.5	Einfluß der 82-Neutronenschale	137

6.4.	Spinverteilung	138
6.4.1	Meßmethoden und bisherige Ergebnisse aus Experiment und Theorie	139
6.4.2	Vandenbosch-Huizenga-Modell	143
6.4.3	Madland-England-Modell: Vorhersage von Isomerenverhältnissen	147
6.4.4	Isomerenverhältnisse dieser Arbeit	149
6.4.5	Allgemeine Diskussion des Problembe- reichs "Primärer Fragmentdrehimpuls"	155
7.	<u>Zusammenfassung</u>	160
	Literaturverzeichnis	162

1. Einleitung und Problemstellung

40 Jahre nach der Entdeckung der Kernspaltung durch O. Hahn und F. Straßmann /1/ ist es noch immer nicht gelungen, ein umfassendes Verständnis dieses Kernprozesses zu erreichen. Zwar ist es möglich, eine ganze Reihe experimenteller Beobachtungen auf theoretischer Basis nachzuvollziehen, beispielsweise die Spaltbarkeit überhaupt /2, 3/, die asymmetrische Verteilung der Massen /4, 5, 6/, die Verteilung der Kernladung /7, 8, 9/ und der kinetischen Energie /5/, doch bleiben diese Beschreibungen immer auf Details des Gesamtphänomens beschränkt und versagen, wenn man versucht, aus einem Modell weitere Informationen zu gewinnen.

Aufgrund des experimentellen Materials, das vor allem an der am längsten untersuchten Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ gewonnen wurde /10-15/, läßt sich ein grobes Bild vom Ablauf der Spaltung schwerer Kerne rekonstruieren /11, 16/:

Durch Einfang eines Neutrons oder durch Beschuß mit Teilchen oder Photonen wird dem Kern Energie zugeführt, was ihn veranlaßt, zu schwingen. Dabei wird eine Deformation erreicht, die zunächst noch von Oberflächenkräften des Kerns kompensiert werden kann. Nach einer Reihe von Schwingungen wird ein als "Sattelpunkt" bezeichneter Gleichgewichtszustand erreicht. Eine geringe weitere Deformation führt nun dazu, daß der Kern instabil wird: Er zerreißt in zwei Fragmente, die schnell durch die einsetzende Coulombabstoßung auseinandergetrieben werden. Diese Bruchstücke sind meist ebenfalls deformiert und hoch angeregt. Sie geben deshalb Energie ab, zunächst in Form prompter Neutronen und später, falls dieser Prozeß energetisch nicht mehr möglich ist, durch Emission von γ -Quanten.

Der gesamte Prozeß dauert ca. 10^{-11} s seit der Anregung des Kerns durch Energiezufuhr /16/. Die Bruchstücke dieser Reaktion liegen dann als β^- -instabile Spaltprodukte vor, von denen die meisten auch den Arbeitsmethoden des Kernchemikers zugänglich sind (Halbwertszeit ≥ 1 s).

Während Form und Verhalten des spaltenden Kerns bis zum Sattelpunkt /6, 12/ und die Abregung der Fragmente /16, 17, 18/ recht gut untersucht sind, liegt der Weg vom Sattelpunkt zum Zerreißpunkt noch sehr im Dunkeln.

Nach den Vorstellungen des Tröpfchenmodells bewegen sich bereits nach Überschreiten des Sattelpunkts die Schwerpunkte der späteren Fragmente voneinander weg. Diese pauschale Betrachtung sagt aber nichts aus über das Verhalten der einzelnen Nukleonen, aus denen sich der Kern zusammensetzt. Adiabatische Modelle /6/ gehen davon aus, daß dem Kern auf diesem Weg genügend Zeit bleibt, um die jeweils energetisch tiefsten Zustände aufzusuchen. Der Kern bliebe "kalt"; Die Anregungsenergie würde völlig in kinetische Energie umgewandelt. In statistischen Vorstellungen wird angenommen, daß die kollektive Bewegung rascher abläuft und die Nukleonen dadurch auf viele Anregungszustände verteilt bleiben /4, 5, 9/. Der spaltende Kern behielte dann potentielle Energie in Form von Anregungsenergie, so daß nun auch Nukleonenpaare aufgebrochen werden könnten. Die Eigenschaft der "Superfluidität" würde also auf dem Weg zum Zerreißpunkt aufgehoben.

Welche der beiden Beschreibungen oder welche Kombination beider Modelle den Zeitbereich zwischen Sattelpunkt und Zerreißkonfiguration am besten beschreibt, bleibt derzeit offen. Meßbare Parameter, die es in dieser Diskussion genau zu kennen gilt, sind: Paarungseffekte für Protonen und Neutronen; Schaleneffekte, auch in deformierten Kernen; Drehimpulse primärer Fragmente.

Das Gebiet der Spaltungsprodukte der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}},f)$ um die Massenzahl 100 scheint aus verschiedenen, weiter unten zu diskutierenden Gesichtspunkten gut geeignet zu sein, um experimentell einen Beitrag zur besseren Kenntnis der genannten Stichworte leisten zu können:

Die Fragmente mit $A \approx 100$ sind komplementär zu Kernen, die durch die Schalenabschlüsse von $Z = 50$ und $N = 82$ gekennzeichnet sind /10/. Von einem Fragment $^{132}_{50}\text{Sn}_{82}$ sollte man erwarten, daß es eine angenähert kugelförmige Gestalt beibehält. Effekte, die auf diese Strukturen zurückzuführen sind, sollten sich auch bei den dazugehörigen leichten Produktkernen, teilweise mit anderen Vorzeichen, äußern.

Für die Kerne um $A \approx 100$ erwartet man dagegen stabile Deformationen /19/, was sie zu einem Objekt ausgedehnter spektroskopischer Untersuchungen gemacht hat /20/. In diesem Zusammenhang wurden bei verschiedenen ^{41}Nb -Isotopen Isomere entdeckt, deren primäre Speisung mit schnellen radiochemischen Methoden in einigen Fällen meßbar ist. Das eröffnet die Möglichkeit, mit Hilfe von Modellvorstellungen Aussagen über die Drehimpulsverteilung der Fragmente zu machen. Die experimentellen Resultate können mit Ergebnissen für die komplementären Isotope des ^{51}Sb verglichen werden.

Ziel dieser Arbeit ist es also, mit Hilfe von radiochemischen Trennverfahren und spektroskopischen Meßmethoden Informationen über die Bildungswahrscheinlichkeit von Isotopen der Elemente Y, Zr, Nb und Mo und der Isomere von Nb-Nukliden zu erhalten. Die gewonnenen Daten sollen mit den Ergebnissen physikalischer Experimente am Massenseparator LOHENGRIN des ILL in Grenoble, die nach Beginn dieser Arbeit durchgeführt und publiziert wurden /21-26/, verglichen werden. Diese Messungen wurden entweder bei der

wahrscheinlichsten kinetischen Fragmentenergie durchgeführt (H.-G. Clerc et al. /21-23/) und ergänzen sich somit mit radiochemischen Werten oder sie wurden über einen weiten Bereich kinetischer Energien durchgeführt und darüber gemittelt (G. Siegert, H. Wollnik et al. /24-26/), was direkt den radiochemischen Messungen entsprechen sollte. Die Resultate sollen dann über Systematiken mit den Ausbeutedaten der übrigen Spaltprodukte der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ in Zusammenhang gebracht werden. Es soll versucht werden, daraus den Einfluß von Paarungs- und Schaleneffekten abzuleiten und zu prüfen, ob zur Berechnung des primären Drehimpulses der Fragmente der Formalismus von R. Vandenbosch und J. R. Huizenga /133-135/ allgemein anwendbar ist.

2. Experimenteller Teil

2.1. Bestrahlungseinrichtungen und Transportsysteme

Alle Bestrahlungen mit thermischen Neutronen wurden am TRIGA Mark II des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz durchgeführt.

Für verschiedene Problemstellungen standen eine Reihe von Bestrahlungspositionen /27, 28/ zur Verfügung, die durch unterschiedliche Neutronenflüsse und Zugriffszeiten für die Probe gekennzeichnet sind. Charakteristische Daten und Verwendungsmöglichkeiten der einzelnen Positionen sind aus Tab. 1 zu entnehmen:

Position	Neutronenfluß (thermisch)	Anteil /%/ schneller N.	Förderzeit d. Probe /s/	Chemie
Rohrpost D (horizontal)	$2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ bei 1,5\$ Puls	2,7	0,2	Automat. Trennappa- ratur
Rohrpost II (vertikal)	$5 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ bei 1,5\$ Puls	2,7	6	Trennungen von Hand
Karus- sell	$7 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	2,1	(Nur Dauerbe- strahlungen)	Trennungen von Hand

Tab. 1: Charakteristische Daten der Bestrahlungspositionen

Zur Ausnutzung der kurzen Förderzeit war an die Rohrpostanlage D stets eine automatische Trennapparatur angeschlossen, während die bestrahlten Proben aus den anderen Positionen von Hand verarbeitet wurden.

2.2. Chemische Trennverfahren

2.2.1 Grundprinzip

Radiochemische Trennungen in Verbindung mit spektroskopischen Meßmethoden haben gegenüber physikalischen Zählerexperimenten den Vorteil einer absoluten Zuordnung der gemessenen Aktivität zu einem bestimmten Nuklid. Um möglichst viele verschiedene Informationen über den Kern in den Experimenten heranzuziehen, wurden verschiedene Trenn- und Meßmethoden eingesetzt:

Durch die Anwendung chemischer Trennverfahren ist die Z-Information eindeutig festgelegt. Die Zuordnung zu einer bestimmten Masse kann über γ -Linien gutbekannter, längerlebiger Zerfallsprodukte erfolgen, daneben aber auch durch die Halbwertszeit und die γ -Energien des Nuklids selbst. Das gleiche trifft auch für isomere Zustände zu.

Grundprinzip der hier angewandten radiochemischen Ausbeutemessungen waren die sog. "verzögerten Abtrennungen": Das interessierende Element einer bestimmten Isobarenkette wird nach verschiedenen definierten Wartezeiten zwischen Bestrahlungsende und chemischer Trennung ("Verzögerungszeit") von den übrigen Kettengliedern getrennt. Anschließend läßt man in beiden Fraktionen ('Filter' und 'Filtrat') alle Nuklide in längerlebige Tochter- oder Enkelprodukte zerfallen. Ein bestimmtes Zerfallsprodukt wird dann - im Falle der Filtratfraktion nach quantitativer Abtrennung von den restlichen Spaltprodukten - in beiden Fraktionen gemessen und erlaubt eine einfache Berechnung des Anteils des interessierenden Isotops an der Gesamtkette zum Trennzeitpunkt. Diese Methode setzt zwei Techniken voraus:

1. Eine chemische Trennmethode für die wesentlichen Spaltprodukte der Region um $A = 100$, also Nb und Zr, die

schnell genug ist, auch Nuklide mit Halbwertszeiten um und unter einer Sekunde zu erfassen und die vor allem selektiv ist gegenüber den übrigen, stark gebildeten Spaltprodukten dieser Region, nämlich Y, Mo und Tc.

2. Eine Methode zur quantitativen Isolierung der längerlebigen Endglieder dieser Isobarenketten, nämlich Mo und Tc.

Die dafür ausgearbeiteten und verwendeten Methoden sollen in den folgenden Absätzen vorgestellt werden.

2.2.2 Nb-Chemie

Die chemische Abtrennung von Nb aus Spaltproduktgemischen basiert auf der Adsorption von Nb (V) an Glasoberflächen aus Salpetersäure /30/. Bedingungen und Mechanismus dieser Adsorption wurden vom Verfasser in einer vorangegangenen Diplomarbeit /29/ ausführlich untersucht. Die für die Anwendung wesentlichen Bedingungen sollen hier kurz wiederholt werden:

Als Adsorptionsmaterial sind am besten Glasfaserfilter der Sorte 6 (anorg. Binder) von Schleicher & Schüll, Dasel, geeignet. Andere SiO_2 -haltige Materialien scheiden wegen ihrer geringen Selektivität oder ihrer ungünstigen chemischen Ausbeute aus.

Die Abhängigkeit des adsorbierten Anteils von Säureart- und -stärke ist in Abb. 1 dargestellt. Durch das breite Plateau und die hohe Ausbeute ist zur Nb-Abtrennung 10-15 m HNO_3 am besten geeignet. Durch die hohe Säurekonzentration wird darüberhinaus die Hydrolyse von Nb - wenigstens für kürzere Zeit - zurückgedrängt. Zur Desorption kann 12 m HCl eingesetzt werden, die, nach Verdünnen auf 6 m HCl, auch zur Wiederadsorption benutzt werden kann.

Zur weiteren Dekontamination, vor allem gegenüber Zr und Sb, bietet sich Weinsäure an, weil die Nb-Adsorption davon nur wenig herabgesetzt wird. Der Kontamination durch andere Störnuklide kann mit 'hold-back'-Trägern begegnet werden.

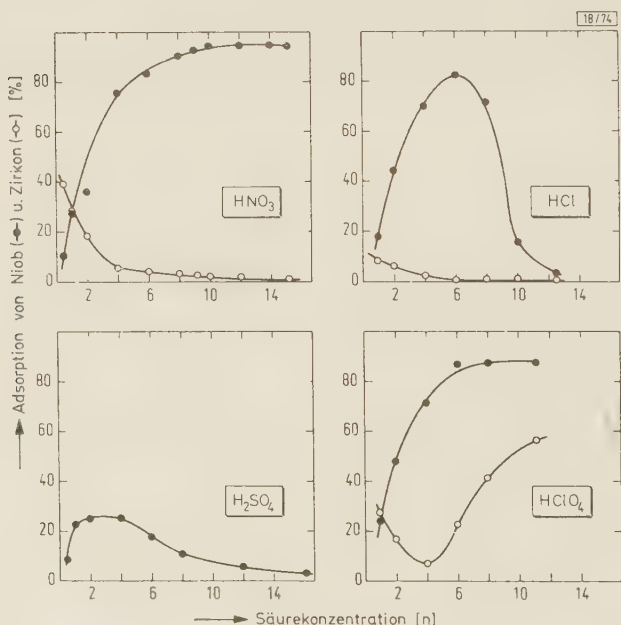


Abb. 1: Adsorption von Nb und Zr in Abhängigkeit von der Konzentration von Salpetersäure, Salzsäure, Schwefelsäure und Perchlorsäure.

Experimentelle Bedingungen:

5 Glasfaserfilter (29 mm ϕ innen), 3 ml Trennlösung 7 ml Waschlösung der jeweils gleichen Konzentration, Sauggeschwindigkeit $\sim 1,4$ ml/s

Trennungen von Hand:

Nb-Abtrennungen mit Verzögerungszeiten ≥ 23 s wurden von Hand durchgeführt. Die zu bestrahlenden Proben hatten folgende Zusammensetzung: 5 - 50 μg ^{235}U (angereichert auf 90%) als $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, 2 mg Weinsäure (Komplexierung von Sb), 2 mg Ascorbinsäure (zur Reduktion der Halogene), 3 - 10 μCi $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ -Tracer (zur Bestimmung der chemischen Ausbeute), gelöst in 1 ml 0,5 m HNO_3 . Die Lösung befand sich in einer Polystyrolkapsel, die ihrerseits in eine Polycarbonattransportkapsel eingelegt war.

Unmittelbar nach Ende des Neutronenpulses und nach dem Herausschießen aus der Bestrahlungsposition wurde die Lösung zu 4 ml konz. HNO_3 gegeben, die folgende 'hold-back'-Träger enthielt: 0,5 mg/ml Zr und 0,05 mg/ml Mo sowie 3 mg/ml Weinsäure. Die resultierende Lösung, ca. 12 m an Salpetersäure, wurde sofort oder nach längeren definierten Wartezeiten über 5 Glasfaserfilter (29 mm ϕ innen, eingelegt in den Schornstein der Hahn'schen Nutsche) gesaugt, wobei nur Nb adsorbiert wurde. Nachgewaschen wurde mit 7 ml 12 m HNO_3 , die 3 mg/ml Weinsäure enthielt. Die kürzest mögliche Abtrennzeit lag bei diesen Versuchen bei ca. 20 s; die chemische Ausbeute an Nb, bestimmt mit ^{95}Nb als Tracer, betrug 80 - 95%. Typische Dekontaminationsfaktoren sind in Tab. 2 zusammengefaßt.

Bei der Messung von Nb-Isotopen mit sehr kleiner Spaltausbeute, aber größerer Halbwertszeit, d. h. $^{96-98}\text{Nb}$, wurde zur weiteren Dekontamination gegenüber dem in viel höherem Maße gebildeten Mutterelement Zr ein zweiter Reinigungsschritt eingeschaltet: Durch Behandlung mit 2 ml siedender, konzentrierter HCl wurde die Nb-Aktivität wieder von den Glasfaserfiltern gelöst und nach Zugabe von etwas HNO_3 die HCl wieder abgeraucht. Die resultierende Lösung wurde auf 3 ml 12 m HNO_3 gebracht und wieder über 5 Glasfaserfilter gesaugt. Nachgewaschen wurde mit 7 ml 12 m HNO_3 . Durch

diesen zweifachen Zyklus sank die chemische Ausbeute auf 30-60%, der Zeitbedarf stieg auf 1-2 min. Die verbesserten Dekontaminationsfaktoren sind ebenfalls aus Tab. 2 zu entnehmen.

Die Qualität der Abtrennungen kann beispielsweise an dem Spektrum in Abb. 22 sowie den Zerfallskurven in Abb. 20 und 24 beurteilt werden.

Element	Verwendetes Nuklid	Zyklus 1x	Zyklus 2x
Cs	^{137}Cs t	$< 10^{-5}$	*
Sr	^{91}Sr s	$3 \cdot 10^{-2}$	$< 10^{-4}$
Ba	^{140}Ba s	$< 3 \cdot 10^{-3}$	*
Y	^{88}Y t	$< 2 \cdot 10^{-5}$	*
La	^{140}La s	$< 10^{-5}$	*
Ce	^{143}Ce t	$< 10^{-5}$	*
In	$^{113\text{m}}\text{In}$ t	$3 \cdot 10^{-3}$	*
Sn	^{113}Sn t	$3 \cdot 10^{-3}$	*
Zr	^{97}Zr s, ^{95}Zr t	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-5}$
Sb	^{125}Sb t	$8 \cdot 10^{-3}$	*
Te	^{132}Te s	$< 10^{-5}$	*
Mo	^{99}Mo s, t	$< 10^{-3}$	*
J	^{132}J s	$\sim 10^{-1}$	$< 10^{-3}$
Tc	$^{99\text{m}}\text{Tc}$ s, t	$7 \cdot 10^{-4}$	*
Ru	^{103}Ru s	$< 5 \cdot 10^{-4}$	*
Rh	^{105}Rh s	$< 10^{-5}$	*

t Tracer s Spaltprodukt * nicht mehr meßbar
($\leq 5 \cdot 10^{-6}$)

Tab. 2: Dekontaminationsfaktoren (Abreicherung der Störnuklide gegenüber Nb)

Bedingungen: Adsorption an jew. 5 Glasfaserfiltern
aus 12 m HNO_3 ;

Träger und Komplexbildner: s. Text

2.2.3 Zr-Chemie

Zur schnellen Abtrennung von Zr aus Spaltproduktgemischen wird die Extrahierbarkeit des Zr mit Tri-n-butylphosphat (TBP) ausgenutzt /31-33/. Das TBP wird dabei nach Aufziehen auf ein inertes Trägermaterial wie Polytrifluormonochloräthylen-Pulver ('Voltalef') als quasi-fester Extraktionsboden eingesetzt /34/. Aus 7,5 m HNO_3 wird dann nur noch Zr (und etwas U, was aber nicht stört) extrahiert.

Da diese Methode nur in automatischen Apparaturen eingesetzt wurde, sind weitere Details dort beschrieben (Kap. 2.3.2).

2.2.4 Aufarbeitung der Filtrate auf Mo und Tc

Zur Messung der längerlebigen Tochter- und Enkelnuklide Mo und Tc in den Filtraten mußten diese quantitativ aus dem restlichen Spaltproduktgemisch isoliert werden. Dabei sollte auch erreicht werden, daß der $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ -Tracer zur Bestimmung der chemischen Ausbeute in diesem Präparat mitgemessen werden kann.

Zur Isolierung von Mo wurde zum salpetersauren Filtrat 5 mg Mo-Träger (als $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}$) gegeben, als Fällungsreagenz 10 mg Pb (als Pb-acetat) und mit Ammoniak gegen Phenolrot auf $\text{pH} \sim 7$ eingestellt. Es fiel PbMoO_4 aus, Nb und Zr wurden mitgerissen. Nach dem Abfiltrieren über Membranfilter konnte die Fällung durch Zugabe von weiteren 3 mg Mo-Träger vervollständigt werden.

Die Abtrennung von Tc wurde immer nach vorangegangener Mo-Chemie durchgeführt. Die nun etwa neutrale Lösung wurde mit HCl angesäuert, 2 mg Re-Träger (als NH_4ReO_4) wurden zugegeben und mit 2 ml 0,025 m wässriger Tetraphenylarsoniumchlorid-Lösung (TPA) das Tetraphenylarsoniumperhenat ausgefällt. Mitfallendes TPA-nitrat störte nicht.

Der Zeitbedarf, einschließlich der Entnahme des Filtrats aus der automatischen Apparatur, betrug etwa 8-11 min. Die Mo- und Tc-Fraktion wurde in einem Präparat in gleicher Geometrie wie die Nb- bzw. Zr-Fraktion an einem Ge(Li)- γ -Detektor gemessen.

Bei der Aufarbeitung der Filtrate mußte vor allem Wert auf ein quantitatives Erfassen der interessierenden Elemente gelegt werden. In parallel durchgeführten Kontrollexperimenten wurden für Mo und Tc, sowie die Tracer $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ chemische Ausbeuten von >98,5 % gemessen. Da die Selektivität aber nicht besonders hoch war, mußte die Sauberkeit der zu untersuchenden γ -Linien durch Halbwertszeitanalysen sichergestellt werden. Die entsprechenden Ergebnisse werden bei der Behandlung der einzelnen Isobarenketten diskutiert werden.

2.3. Automatische Trennapparaturen

Zur schnellen Abtrennung von Nb oder Zr mit Verzögerungszeiten von 0,6-30 s wurden automatische Trennapparaturen eingesetzt, die im Hause in Anlehnung an bereits vorhandene Typen /31/ entwickelt und gebaut wurden.

Diese Apparaturen sind üblicherweise aus Polycarbonat gefertigt und teilweise in "Module" zerlegbar, d. h., daß einzelne Teile davon zu einer neuen, schnelleren Variante zusammengesetzt werden können. Die Hähne bestehen aus Teflon und werden mit Vaseline gefettet. Sie werden durch Bolzen mit einem Preßluftdruck von 5-7 bar bewegt. Zur Erreichung höherer Durchflußgeschwindigkeiten werden Waschlösungen mit ca. 1,5 bar aus ihren Gefäßen gedrückt. Zum Absaugen der Lösungen liegt ein Unterdruck von $<10^{-3}$ bar an, der durch eine Ölpumpe erzeugt wird. Zur Vermeidung von Druck- und Vakuumabfall im Verlauf der Trennung werden Vorratskessel zwischengeschaltet. Die Dichtigkeit der Apparatur wird durch O-Ringe gewährleistet.

Die Glasfaserfilter (Nb-Chemie) oder die TBP-Extraktionsböden (Zr-Chemie) befinden sich in beweglichen Schiffchen, die - bei spektroskopischen Experimenten - in einer Gleitbahn durch eine Beton-Blei-Abschirmung in die Meßposition geschossen werden können. Das Filtrat der chemischen Trennung läuft in ein vorgelegtes Reagenzglas, in dem es ohne Verluste aus der Apparatur zur Weiterverarbeitung entnommen werden kann.

Die Druckluft für Hähne und Waschlösungen wird über Magnetventile gesteuert. Das Zeitprogramm für die automatischen Trennungen ist in einem 4 K-Kernspeicher eingegeben und kann daraus zeitgleich mit dem Neutronenpuls abgerufen werden.

Einen Schnitt durch die für Zr- und Nb-Abtrennungen verwendete Apparatur ist in Abb. 2 dargestellt. Das eingezeichnete Zeitschema bezieht sich auf die Nb-Chemie.

2.3.1 Automatische Nb-Abtrennung

Der prinzipielle Ablauf für die automatischen Trennungen war der gleiche wie beim Arbeiten von Hand. Das Zeitprogramm dafür (s. auch Abb. 2) ist in Tab. 3 nochmals aufgenommen und um eine Funktionsbeschreibung ergänzt worden. Änderungen an diesem Zeitschema für längere Verzögerungszeiten als die dargestellte (kürzeste) wurden durch Addition des Zeitbetrags t erreicht.

Die Lösungen waren wie folgt zusammengesetzt:

Probelösung:

1 ml 2 m HNO_3 mit 20-50 μg ^{235}U (als $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, 90% angereichert), 2 mg Weinsäure; $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ -Tracer zur Kontrolle der chemischen Ausbeute; (bei spektroskopischem Arbeiten: 2 mg Ascorbinsäure zur Reduktion der Halogene vor dem Austausch an den AgCl -Böden).

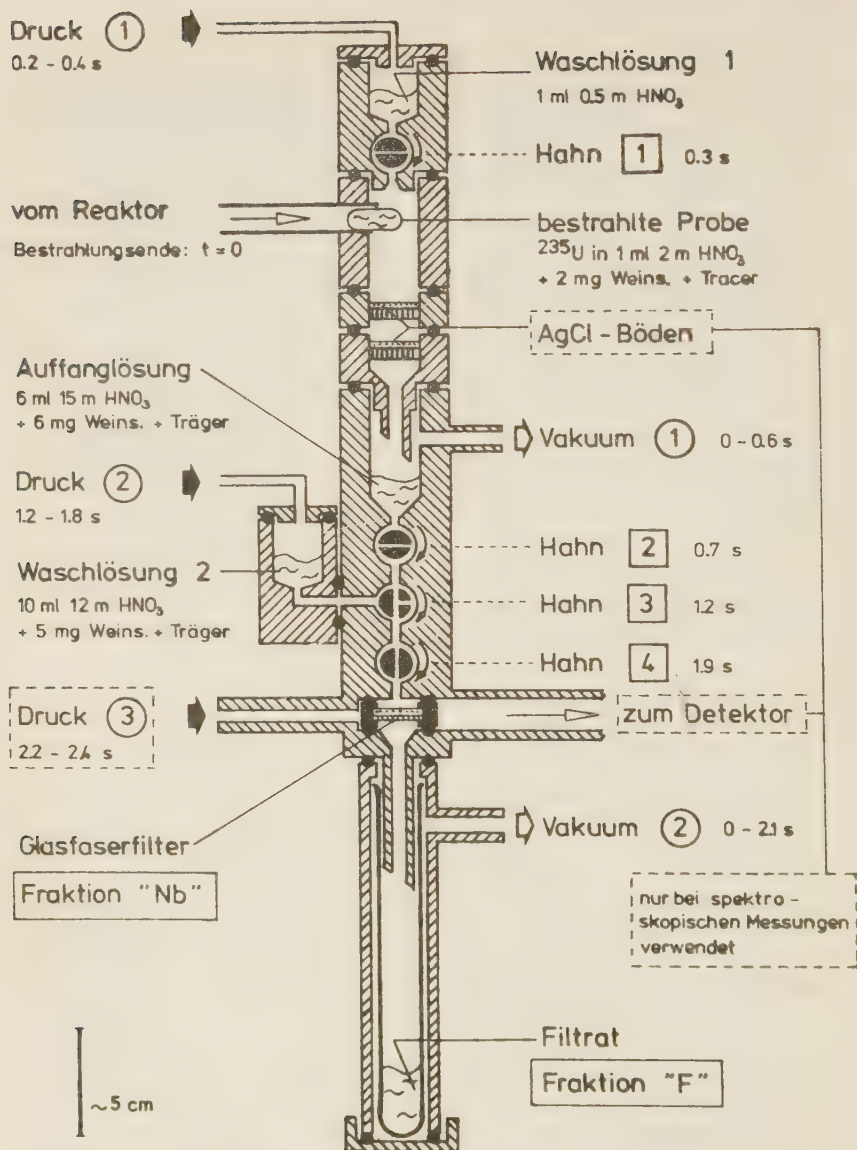


Abb. 2: Schema der automatischen Trennapparatur und Zeitprogramm für die schnelle Abtrennung von Nb

Waschlösung 1:

1 ml 0,5 m HNO_3

Auffanglösung:

6 ml 15 m HNO_3 mit folgenden Komplexbildnern und 'hold-back'-Trägern: 1 mg/ml Weinsäure, 0,5 mg/ml Zr (als ZrOCl_2) und 0,01 mg/ml Re, Cs, Ba, Mo und La.

Waschlösung 2:

10 ml 12 m HNO_3 mit 0,5 mg/ml Weinsäure und 0,2 mg/ml Zr-Träger.

Die kürzeste Abtrennzeit lag bei 0,9 s nach Bestrahlungs-
ende, allerdings mit einer chemischen Ausbeute von nur
ca. 20%. Erst bei einer Abtrennzeit von 1,5 s stieg die
Ausbeute auf 25-40%.

Position	Zeitpunkt /s/	Funktion
Druck 0	0,0	Pulsende (Bestrahlungs- ende), Herausschießen der Probe aus dem Reak- tor
	0,2	Zerspringen der Proben- kapsel im Kopf der Appa- ratur
Hahn 1 Druck 1	0,3 0,2-0,4	Auswaschen der Kapsel- splitter mit 1 ml 0,5 m HNO ₃
Vakuum 1	0,0-0,6	Absaugen der Probenlösung zu 6 ml konz. HNO ₃ (Spek- troskopie:saugen durch 2 AgCl-Böden)
Hahn 2 Vakuum 2	0,7 (+t) 0,0-2,1(+t)	Saugen der nun ca. 10 m HNO ₃ -sauren Lösung durch die Glasfaserfilter, → <u>Nb-Abtrennung</u>
Hahn 3 Druck 2	1,2 (+t) 1,2-1,8(+t)	Nachwaschen der Glasfaser- filter mit 10 ml 12 m HNO ₃
Hahn 4	1,9 (+t)	Abschließen der Nb-Frak- tion, Trockensaugen
		<u>Nur bei spektroskopischen Experimenten:</u>
Hahn 5	2,2 (+t)	Lockern des Schiffchens
Druck 3	2,3 (+t)	Schießen in die Meßposi- tion
	2,6 (+t)	Meßbeginn

Tab. 3: Zeitprogramm für die automatische Abtrennung von Nb. Im Falle von verzögerten Abtrennungen muß ab Position "Hahn 2" der Zeitbetrag "t" dazuaddiert werden.

2.3.2 Automatische Zr-Abtrennung

Die schnellen Zr-Abtrennungen folgten im wesentlichen dem in /31/ dargestellten Zeitschema. Die Unterschiede lagen im Verzicht auf die AgCl-Böden zur Abtrennung der Halogene bei den Ausbeutemessungen und in der Verwendung von ca. 2 g TBP-Voltalef als Extraktionsboden. Beide Änderungen erhöhten die chemische Ausbeute von 15% /31/ auf 25-40%.

Die Zr-Chemie wurde ebenfalls in der Nb-Apparatur (Abb. 2) durchgeführt. Das Zeitschema ist aus Tab. 4 zu entnehmen. Die Lösungen hatten die folgenden Zusammensetzungen:

Probelösung:

1 ml 0,5 m HNO_3 mit 20-50 μg ^{235}U (als $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$, 90% angereichert), 2 mg Weinsäure, $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ -Tracer zur Bestimmung der chemischen Ausbeute; (bei spektroskopischem Arbeiten: 2 mg Ascorbinsäure zur Reduktion der Halogene vor dem Austausch an den AgCl-Böden).

Waschlösung:

1 ml 0,5 m HNO_3 ;

Auffanglösung:

2 ml 15 m HNO_3 mit 10 mg/ml KClO_3 und 0,01 mg/ml Mo- und Sb-Träger;

Waschlösung 2:

8 ml 7,5 m HNO_3 mit 5 mg/ml KClO_3 und 0,01 mg/ml Mo- und Sb-Träger;

Position	Zeitpunkt /s/	Funktion
Druck 0	0,0	Pulsende (Bestrahlungs- ende), Herausschießen der Probe aus dem Reaktor
	0,2	Zerspringen der Proben- kapsel im Kopf der Appa- ratur
Hahn 1 Druck 1	0,3 0,2-0,4	Auswaschen der Kapsel- splitter mit 1 ml 0,5 m HNO ₃
Vakuum 1	0,0-1,0	Absaugen der Probelösung zu 2 ml 15 m HNO ₃ ; (Spek- troskopie: saugen durch 2 AgCl-Böden)
Hahn 2 Vakuum 2	1,2 (+t) 0,0-3,5 (+t)	Saugen der 7,5 m HNO ₃ - sauren Lösung durch 32 g TBP-Voltalef → <u>Zr-Abtrennung</u>
Hahn 3 Druck 2	2,3 (+t) 2,3-3,2 (+t)	Nachwaschen mit 8 ml 7,5 m HNO ₃
Hahn 4	3,4 (+t)	Abschließen der TBP-Frak- tion, Trockensaugen
		<u>Nur bei spektroskopischen Arbeiten:</u>
Hahn 5	3,6	Lockern des Schiffchens
Druck 3	3,7	Schießen in die Meßposi- tion
	4,0	Meßbeginn

Tab. 4: Zeitprogramm für die automatische Abtrennung von
Zr. Im Falle von verzögerten Abtrennungen muß ab
Position "Hahn 2" der Zeitbetrag "t" dazuaddiert
werden.

2.3.3 Apparatur zur Erreichung von sehr kurzen Abtrennzeiten

Das Absinken der chemischen Ausbeute bei schnellen Nb-Abtrennungen ($< 1,5$ s) und die erwarteten kurzen Halbwertszeiten der Isomere schwerer Nb-Nuklide (bis 0,8 s) machten es notwendig, eine veränderte, schnellere Trennapparatur zu entwickeln.

Diese schnelle Variante benutzt von der bisher verwendeten Apparatur den Kopf und das Auffanggefäß für die Filtrate; neu ist die Halterung für Böden bzw. Glasfaserfilter. In der Schemazeichnung (Abb. 3) erkennt man, daß der Kopf der Apparatur direkt über den Böden bzw. den Glasfaserfiltern angebracht ist, d. h., die beim Zerplatzen der Kapsel freiwerdende Probelösung wird unmittelbar danach in Zr- bzw. Nb-Fraktion und Filtrat getrennt. Das Spaltmaterial muß daher gleich in der für die Trennung notwendigen Säureart und -konzentration betrachtet werden. Folgende Lösungen wurden eingesetzt:

Probelösung Nb-Chemie:

2 ml 10 m HNO_3 mit 20-40 μg ^{235}U , 4 mg/ml Weinsäure;

Waschlösung Nb-Chemie:

2 ml 12 m HNO_3 mit 4 mg/ml Weinsäure, 1 mg/ml Zr-Träger, 0,025 mg/ml Re, Cs, Ba, Mo und La;

Probelösung Zr-Chemie:

2 ml 7,5 m HNO_3 mit 20-40 μg ^{235}U , 4 mg/ml Weinsäure;

Waschlösung Zr-Chemie:

2 ml 7,5 m HNO_3 mit 4 mg/ml Weinsäure, 0,025 mg/ml Sb- und Mo-Träger;

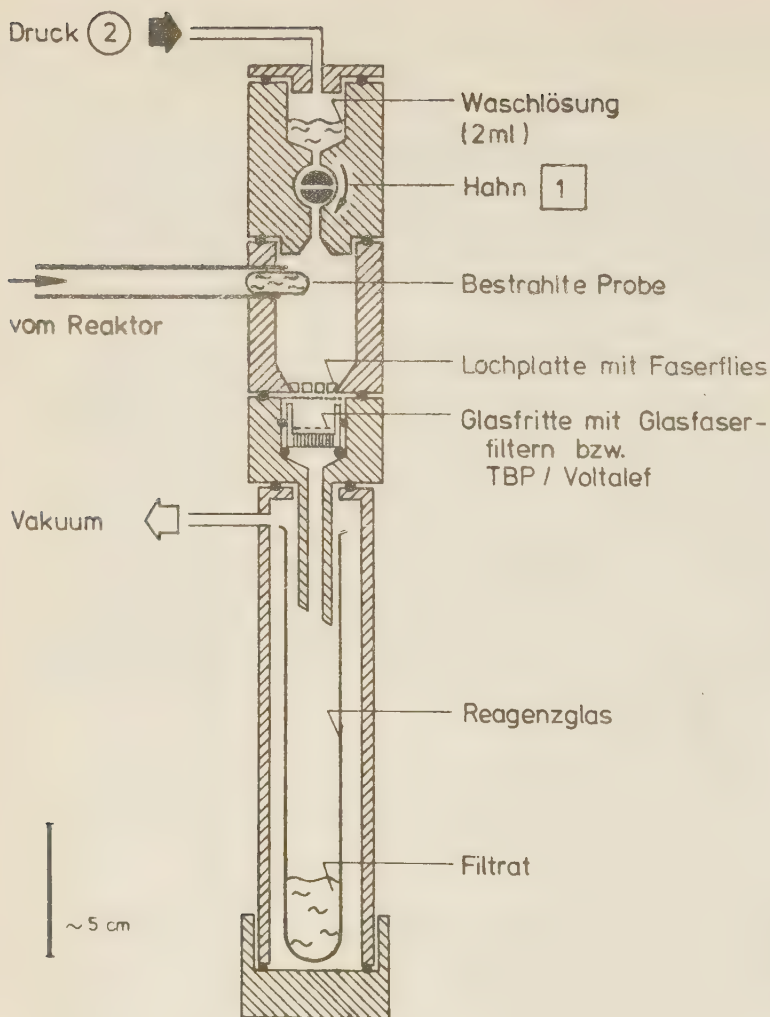


Abb. 3: Schnitt durch die Trennapparatur für Trennzeiten bis minimal 0,6 s ab Bestrahlungsende

Zur Trennung wurden 2-3 Glasfaserfilter bzw. ca. 1 g TBP/Voltalef verwendet.

Sollte die Trennung nicht unmittelbar nach dem Neutronenpuls, sondern verzögert durchgeführt werden, so konnte die Probenkapsel mit geringem Preßluftdruck aus der Bestrahlungsposition in eine Warteschleife geschossen werden und von da nach definierter Wartezeit t in den Kopf der Apparatur. Das Zeitprogramm für diese Variante ist aus Tab. 5 zu entnehmen:

Position	Zeitpunkt /s/	Funktion
Druck 0	0,0	Pulsende (Bestrahlungs- ende) Herausschießen aus dem Reaktor in die Warteschleife* (0,5 atm)
Druck 1*	- (+t)	Herausschießen aus der Warteschleife* in den Kopf der Apparatur, Zer- springen der Probenkapsel
	0,6 (+t)	Trennung
Hahn 1	0,5 (+t)	Auswaschen der Kapsel- splitter
Druck 2	0,5-0,7 (+t)	
Vakuum	0,0-1,6 (+t)	Trockensaugen

* Diese Position entfällt im Falle der kürzesten Abtrenn-
zeit

Tab. 5: Zeitprogramm für die schnellere Variante der auto-
matischen Trennapparatur (Nb- und Zr-Chemie)

Die kürzeste erreichbare Abtrennzeit lag bei 0,6 s nach Bestrahlungsende, die chemische Ausbeute betrug 40-55%, sowohl für Nb als auch Zr.

Die Reinheit der so gewonnenen Proben war schlechter als bei der großen Apparatur: Die Nb- bzw. Zr-Fraktion enthielt ca. 2-5% Zr bzw. Nb und <1% Mo als wesentliche Störung. Diese gegenseitige Kontamination konnte aber in Kenntnis des genauen Wertes der Kontamination (durch die jeweils mitgemessene Traceraktivität) und in Kenntnis der Spaltausbeute zur Zeit Δt (aus der Extrapolation der Meßergebnisse, die mit der großen Apparatur erhalten wurden) korrigiert werden.

2.4. Bestimmung des Trennzeitpunkts

Für die Anwendbarkeit der Methode der verzögerten Abtrennungen stellt die Kenntnis des exakten Trennzeitpunktes ein wesentliches Kriterium dar. Die zeitliche Lage dieses Trennzeitpunktes und sein Fehler wird von zwei Größen bestimmt: Von der Lage des Neutronenpulses und von der Wahl des Zeitprogramms für die chemische Trennung.

Der zeitliche Ablauf der Reaktorpulse wurde von H. Menke et al. /28/ ausführlich untersucht. Für die üblicherweise verwendeten 1,5 β -Pulse (eingeführte Reaktivität $\beta/\beta = 1,5$) wurden folgende Zeiten erhalten: Impulsmaximum 440 ms nach Auslösung durch den Programmgeber; Halbwertsbreite 60 ms; die zeitliche Lage ist innerhalb der Halbwertsbreite zu reproduzieren. Daraus resultiert ein Wert für das "Bestrahlungsende" von 470 ms nach Pulsstart durch den Programmgeber.

Zur Messung des zeitlichen Verlaufs der chemischen Trennung wurde in Höhe des beweglichen Schiffchens, d. h. an der

Position der Nb-Adsorption, ein β -Detektor installiert, der bis auf eine Öffnung von 5 mm ϕ mit Blei abgeschirmt war. Angeschlossen war der Detektor an einen Vielkanalanalysator mit einer Kanalbreite von 50 ms. Die Meßuhr wurde zeitgleich mit dem Programm für Puls und Apparatur gestartet. Als Beispiel für ein resultierendes Zeitprofil wurde in Abb. 4 eine Trennzeit von $\sim 3,5$ s gewählt. Miteingezeichnet ist die zeitliche Lage der wesentlichen Funktionen der automatischen Apparatur.

Man erkennt deutlich den Verlauf der durch den Puls gebildeten Spaltaktivität durch die Trennposition. Die Halbwertsbreite beträgt hier 0,5 s. Es resultiert eine exakte Verzögerungszeit von $\Delta t = 3,0 \pm 0,25$ s. Dieser Wert ist gerade auch das zeitliche Mittel des eigentlichen Abtrennvorgangs in der Apparatur, das erhalten wird aus:

$$\Delta t = [\bar{t} \text{ (Hahn 3)} + \bar{t} \text{ (Hahn 2)}] / 2$$

Der jeweilige Δt -Wert brauchte deshalb nur an einigen wenigen Verzögerungszeiten experimentell überprüft zu werden.

Auf die gleiche Weise wurde der Trennzeitpunkt für die schnelle Variante der Apparatur bestimmt. Hier zeigte sich, daß die Trennung 0,6 s nach dem Beginn des Herausschießens aus dem Reaktor bzw. 0,5 s nach dem Herausschießen aus der Warteschleife stattfindet. Durch das geringere Volumen der eingesetzten Lösungen war die Breite des Trennzeitpunktes etwas geringer: Sie betrug hier $\pm 0,15$ s.

Für den Fehler an der Verzögerungszeit Δt mußte im folgenden nur die Unsicherheit im Trennzeitpunkt berücksichtigt werden, da die Breite des Neutronenpulses demgegenüber vernachlässigt werden konnte. Dieser Fehler in der Zeitachse wurde bei der Analyse der Meßdaten durch die Fitroutinen berücksichtigt.

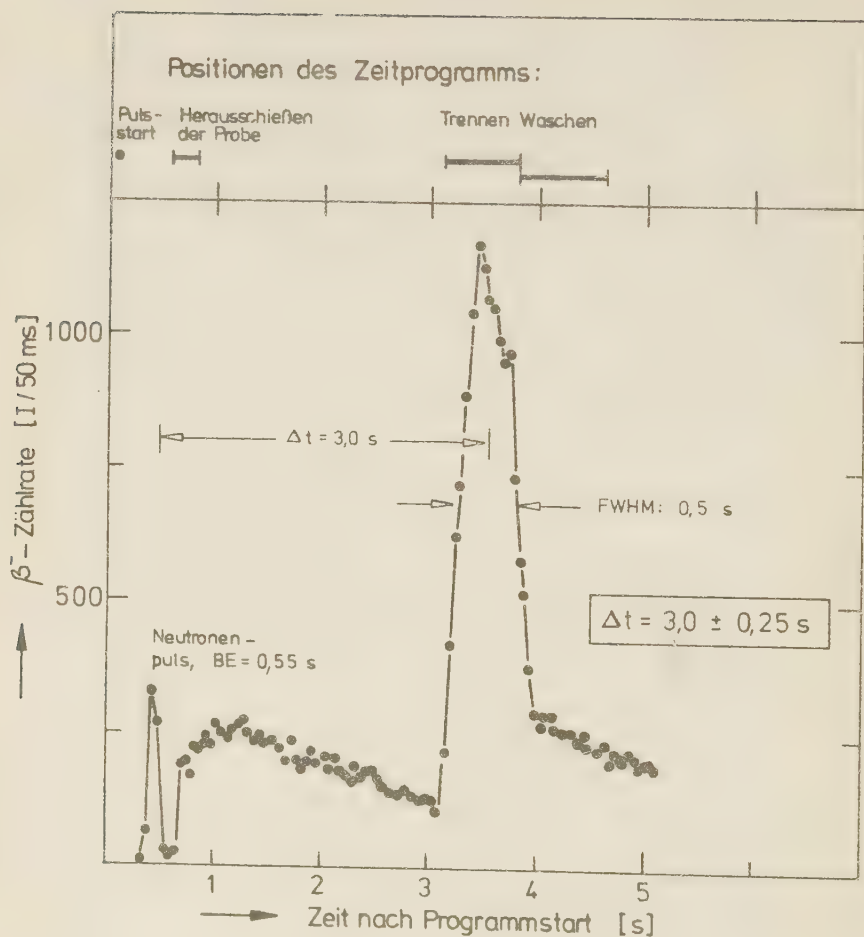


Abb. 4: Trennprofil für die automatische Apparatur
Vorgewählte Trennzeit: $\sim 3,5 \text{ s}$ nach Programmstart

2.5. Instrumentation

Zur Aufnahme der γ -Spektren wurden Ge(Li)-Halbleiter-Detektoren benutzt, deren Eigenschaften in Tab. 6 zusammengestellt sind:

Detektor	Aktives Volumen /cm ³ /	Nachweiswahrscheinlichkeit /%/ a)	Auflösung FWHM bei 1332 keV /keV/	Peak zu Compton-Verh. bei 1332 keV
A	30	3	2,4	16:1
B	30	4,4	2,65	18:1
C	35	5	2,15	25:1
D	35	5	2,1	25:1
E	104,35	23	2,3	40:1

a) bezogen auf einen 3' x 3' NaJ-Kristall

Tab. 6: Eigenschaften der verwendeten Halbleiterdetektoren

Für die Detektoren B, D und E wurden Kurven für die relative Nachweiswahrscheinlichkeit aufgenommen /38/ und zwar für den Probenabstand und die Probenbeschaffenheit (Ausdehnung, Dicke) der späteren Meßpräparate. Ein Beispiel ist in Abb. 5 für den Det. E dargestellt. Als Standard- γ -Quellen wurden verwendet: ⁵⁶Co, ⁷⁵Se, ¹²⁵Sb, ^{166m}Ho, ¹⁸²Ta /35/, ¹⁵⁵Eu /36/, ¹⁶⁰Tb /37/. Nicht ausgewertet wurden γ -Linien, die durch starke Koinzidenz-Summenverluste gestört sind /35/, was besonders bei kleinen Probenabständen (~2-3 cm) befürchtet werden mußte. Daneben wurden zur Eichung Absolutstandards der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt

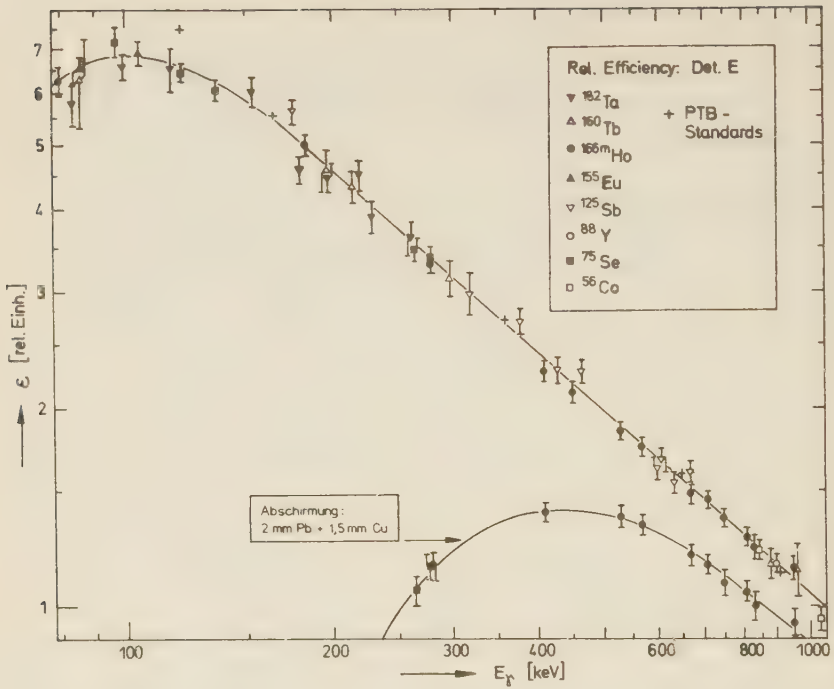


Abb. 5: Relative Nachweiswahrscheinlichkeit Detektor E
 Probenabstand: 3,5 cm
 PTB-Standards: ^{57}Co , ^{88}Y , ^{137}Cs , ^{133}Ba ; absolut;
 in Punktquellengeometrie
 Unteneingezeichnet: Rel. Nachweiswahrscheinlichkeit bei einer Abschirmung durch 2 mm Pb und 1,5 mm Cu
 Fehlerangaben berücksichtigen Fehler aus Zählstatistik (1σ) und Linienintensität /35 - 37/

(PTB) verwendet, die allerdings in Punktquellengeometrie gemessen wurden. Das erklärt die Abweichung des Wertes für 122 keV in Abb. 5 gegenüber dem Kurvenverlauf für ausgedehnte Präparate.

In Abb. 5 (unten) ist eine Efficiency-Kurve eingezeichnet, die für ein spezielles Experiment (Kap. 5.2) aufgenommen wurde, bei dem der starke niederenergetische γ -Anteil (herrührend von ^{99}Nb) durch Pb und Cu zur Vermeidung von Totzeiteffekten abgeschirmt war.

Für die Experimente, die in Kap. 4 beschrieben werden, wurden jeweils zwei Detektoren mit ähnlichen Eigenschaften bezüglich ihrer Nachweiswahrscheinlichkeit relativ zueinander geeicht. Dabei wurden Eichstandards in der exakt gleichen Probenposition an beiden Detektoren mit der gleichen Meßzeit aufgenommen. Aufgetragen wurde dann das Verhältnis der Zählraten einer gegebenen γ -Linie als Funktion der Energie. Für die Detektoren A+B ist dies in Abb. 6 dargestellt. Die durchgezogene Linie ist das Ergebnis eines Polynomfits dritten Grades (FITPOL /39/).

Die Detektorsignale wurden über Vorverstärker, Linearverstärker und Analog-Digital-Konverter (ADC) einem 4 K bzw. 16 K Vielkanalanalysator zugeführt. Die Spektren wurden dann über ein 7 Spur Magnetbandgerät ausgegeben und an einer pdp 11/45-Rechenanlage, wie im folgenden beschrieben, ausgewertet.

Zum Ausgleich von Verstärkerdrifts die meist als Folge von Temperaturänderungen eintreten, wurden digitale Spektrumsstabilisatoren /40/ eingesetzt. Diese korrigieren in den Meßpausen die Verstärkung relativ zu der γ -Strahlung einer Referenzquelle, meist ^{57}Co und ^{88}Y . Die Zeitsteuerung geschah durch ebenfalls am hiesigen Institut entwickelte Meßuhren.

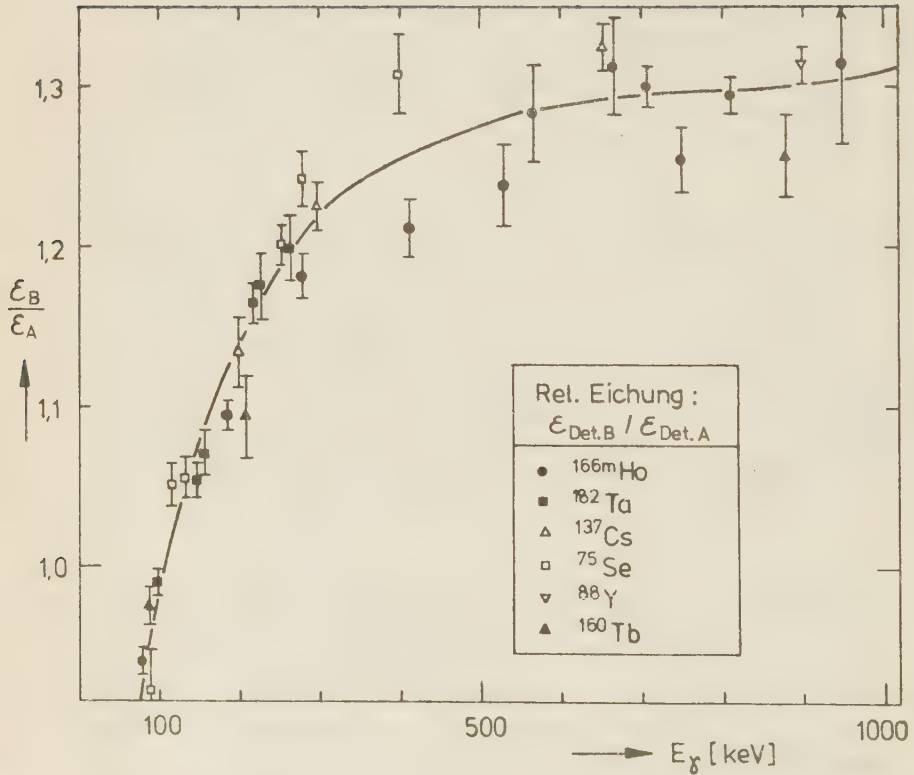


Abb. 6: Verhältnis der relativen Nachweiswahrscheinlichkeiten von Det. B/Det. A als Funktion der γ -Energie
Probenabstand: 2,5 cm (A) bzw. 2 cm (B)
Fehlerangaben berücksichtigen den Fehler aus der Zählstatistik an beiden Detektoren.

2.6. Datenauswertung

Alle Auswertungen wurden an einer pdp 11/45-Rechenanlage des Instituts für Kernchemie durchgeführt.

2.6.1 γ -Spektren

Die auf Magnetband abgespeicherten γ -Spektren wurden mit dem Programm 'GAMMA' /41/ ausgewertet. Zum Anpassen der experimentellen Peakform wird in diesem Programm eine modifizierte Gaußfunktion mit einer Verbreiterung zur niederenergetischen Seite verwendet, die durch folgende Funktion beschrieben wird:

$$Y = Y_0 \left(e^{-\frac{\ln 2}{(h/2)^2} (x - x_0)} + \alpha x_m e^{-x_m} \right)$$

Darin bedeuten:

- Y Zählrate in Kanal x
- Y_0 Amplitude des Maximums
- h Halbwertsbreite
- x Kanalnummer
- x_0 Kanalnummer des Peakmaximums
- $x_m = (x_0 - h)h$
- $\alpha \quad \begin{cases} = 0 & \text{für } x_m \geq 0 \\ > 0 & \text{für } x_m < 0 \end{cases}$

Mit dem Unterprogramm 'GSE' /41/ wird mit Hilfe von Eichstrahlermein Datensatz erstellt, der die Energieabhängigkeit von Energieeichung, Halbwertsbreite und Asymmetrie enthält. Als Eichstandards bis 2 MeV wurden verwendet: ^{57}Co , ^{88}Y , /42/, ^{56}Co , ^{75}Se , ^{166m}Ho , ^{182}Ta /35/, ^{60}Co , ^{137}Cs /42/.

Das Programm 'GAMMA' liefert dann die genaue Energie der γ -Linie, sowie Intensität mit Fehlern. Daneben wird eine Gütezahl ausgegeben, die etwa einem reduzierten χ^2 -Wert entspricht. Die Qualität des Fits kann überdies auf einem Bildschirm im Dialogbetrieb überprüft werden.

2.6.2 Zerfallskurvenanalysen

Die Analyse der Nachbildungs- und Zerfallskurven erfolgte zunächst graphisch oder, falls möglich, über eine lineare Regression. Die daraus gewonnenen Parameter dienten dann als Startwerte für die anschließende Rechnerauswertung. Für einfache Zerfallskurven und komplexe Kurven, die durch eine Exponentialsumme beschrieben werden können, wurden die Programme 'ESANW' und 'FITEXS' /39/ verwendet, Nachbildungskurven wurden mit dem Programm 'FITBØ 2' /39/ gefittet. Alle genannten Programme berücksichtigen Fehler an den experimentellen Daten sowohl in der Intensitäts- als auch in der Zeitachse, was besonders bei Ausbeuteexperimenten mit verzögerten chemischen Abtrennungen wesentlich war infolge der Unschärfe in der Trennzeit (Kap. 2.4). Die Fehler an den resultierenden Parametern der Kurven wurden der Kovarianz-Matrix des Fits entnommen /39/.

Systematische Fehler, die dadurch entstehen, daß Meßzeiten vergleichbar oder größer werden als die Halbwertszeiten, wurden nach der Methode von G. B. Cook et al. /43/ kompensiert.

2.6.3 Fehlerrechnung

Bei der Analyse von Zerfallskurven wurden die von den Programmen errechneten Fehler an Anfangsaktivitäten bzw. -ausbeuten und Halbwertszeiten verwendet. Der Fehler von daraus abgeleiteten Größen wurde nach den bekannten Methoden der

Fehlerfortpflanzung /44, 45/ bestimmt. Abweichungen davon in besonders gelagerten Fällen werden im Text besonders beschrieben.

3. Spaltausbeuten der Isobarenkette 99 in der
Reaktion $^{235}\text{U} (n_{\text{th}}, f)$

3.1. Bisherige experimentelle Situation

In der Isobarenkette 99 wurden bisher radiochemische Messungen nur für die fraktional kumulierte Ausbeute von $^{99\text{m}}\text{Nb}$ publiziert:

D. E. Troutner et al. /46/ fanden 1963 einen Wert von $33 \pm 3\%$ bei einer Halbwertszeit von $2,3 \pm 0,3$ min. Dieses Ergebnis wurde später von R. M. Harbour und D. E. Troutner /47/ auf $32 \pm 2\%$ und $2,6 \pm 0,2$ min präzisiert. Nach Abtrennung von flüchtigen Nb-Chlorid aus dem Spaltproduktgemisch wurde von J. Blachot et al. /48/ eine fraktional kumulierte Ausbeute von 30 % und eine Halbwertszeit von 2,4 min gemessen. Von allen Autoren wird auf die Existenz eines ^{99}Nb -Isomers hingewiesen mit einer abgeschätzten oder abgemessenen Halbwertszeit von 10 ± 2 s /46/, 9 ± 2 s /49/ bzw. $14,3 \pm 0,6$ s /50/.

Ein vorläufiges Zerfallsschema von $^{99\text{m}}\text{Nb}$ wurde von P. Cavallini et al. /51/ publiziert. Ausführliche spektroskopische Untersuchungen wurden von W. Herzog /52/ durchgeführt. Als Halbwertszeiten für die beiden Isomere wurden $2,6 \pm 0,2$ min /51/ bzw. $2,7 \pm 0,1$ min und $15,2 \pm 0,4$ s /52/ gemessen.

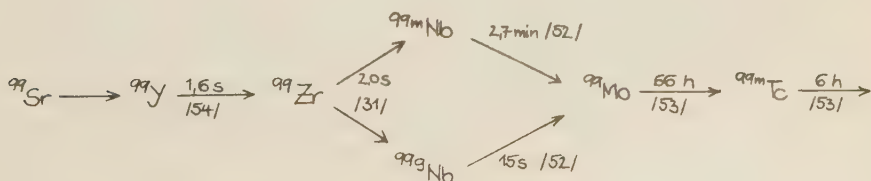
Im Verlauf der vorliegenden Arbeit wurden am neu installierten Spaltproduktseparator LOHENGRIN am Hochflußreaktor des Instituts Max von Laue - Paul Langevin (ILL) in Grenoble /55/ von verschiedenen Gruppen eine Reihe von Messungen durchgeführt, die auf physikalischen Nachweismethoden basieren und im allgemeinen den kompletten leichten Ast der Massenverteilung abdecken können: H.-G. Clerc et al. /21, 22/ verwendeten zur Z-Identifizierung nach der Massentrennung den Ener-

gieverlust in Kohlenstoffabsorbern und die Messung der Restenergie durch eine Flugzeitmethode /23/. G. Siegert, H. Wollnik et al. benutzten zum Elementnachweis Oberflächen-sperrschichtdetektoren /24-26/. Mit dem Separator LOHEN-GRIN ist neben der Massentrennung auch eine Trennung nach der kinetischen Energie der Spaltprodukte möglich. Die Ergebnisse dieser Autoren werden bei der Behandlung der einzelnen Isobarenketten diskutiert. Auf das Problem der grundsätzlichen Vergleichbarkeit mit radiochemischen Messungen soll in einem besonderen Kapitel eingegangen werden (Kap. 6.1.).

Ein besonderes Interesse über die reine Messung der Ladungsverteilung hinaus beansprucht die Kette 99 durch das Auftreten eines Isomerenpaares im ^{99}Nb , das von mehreren Autoren /46, 49-52/ beschrieben wurde. W. Herzog /52/ ordnete aufgrund spektroskopischer Untersuchungen den beiden Zuständen die folgenden Spins zu: $^{99\text{m}}\text{Nb}(2,7 \text{ min}): 1/2^-$, $^{99\text{g}}\text{Nb}(15 \text{ s}): 9/2^+$. Die Messung der primären Speisung der beiden Isomere ist mit rein physikalischen Nachweismethoden bisher nicht möglich gewesen; dagegen bietet sich in der Kombination von schneller chemischer Trennung mit anschließender γ -Spektrometrie ein Weg zur Bestimmung des Isomerenverhältnisses an.

3.2. Ausbeutemessungen

Einen Überblick über die komplexe Ausgangssituation der Isobarenkette 99 gibt das folgende Schema:



Erschwert wird die Analyse dieser Kette durch die Tatsache, daß offenbar beide Nb-Isomere durch den Zr-Vorläufer gespeist werden /46/ und darüberhinaus durch das Auftreten ähnlicher Halbwertszeiten bei ^{99}Y und ^{99}Zr /54, 31/.

Zur Messung der primären Spaltausbeuten dieser Kette wurden 101 schnelle oder verzögerte Nb-Abtrennungen sowie 45 schnelle oder verzögerte Zr-Abtrennungen durchgeführt. Nach dieser ersten Trennung wurde gewartet, bis in den jeweils erhaltenen Fraktionen (Nb-Fraktion + Filtrat bzw. Zr-Fraktion + Filtrat) alle Glieder ins $66\text{ h} - ^{99}\text{Mo}$ zerfallen waren, um dann aus den Filtraten das ^{99}Mo zu isolieren. Gemessen wurde nach ca. 3 Tagen das dann im Gleichgewicht mit ^{99}Mo befindliche $6\text{ h } ^{99\text{m}}\text{Tc}$ anhand einer intensiven γ -Linie von $140,5\text{ keV}/53/$.

Die Summe der ^{99}Mo -Aktivitäten in beiden Fraktionen, zurückgerechnet auf das Bestrahlungsende (A_{Nb} und A_{F} , bzw.

A_{Zr} und A_{F}) stellt die gesamte Ausbeute der Masse 99 dar. Der Anteil der Aktivität in der Nb-Fraktion, korrigiert für die chemische Ausbeute, die aus der Messung der zugegebenen $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ -Tracer erhalten wurde, stellt gerade den Anteil an ^{99}Nb zur Zeit der chemischen Trennung dar ($Y(\Delta t)$):

$$Y_{\text{Nb}}(\Delta t) = \frac{A_{\text{Nb}}}{(A_{\text{Nb}} + A_{\text{F}}) \cdot f_{\text{CA}}} ,$$

bzw.

(3.1)

$$Y_{\text{Zr}}(\Delta t) = \frac{A_{\text{Zr}}}{(A_{\text{Zr}} + A_{\text{F}}) \cdot f_{\text{CA}}} .$$

Darin ist:

Δt	Verzögerungszeit zwischen Bestrahlungsende (Puls) und chemischer Trennung;
$A_{Nb, F}$	Aktivität von ^{99}Mo in der Nb- bzw. Filtratfraktion zum Bestrahlungsende;
$A_{Zr, F}$	analog für Zr;
f_{CA}	Chemische Ausbeute für Nb bzw. Zr

Die Ergebnisse der 3 bis 7 zu jeder Verzögerungszeit durchgeführten Versuche wurden gemittelt; als Fehler wurde die statistische Streuung vom Mittelwert angenommen.

Aus den so gewonnenen Daten wurden in Abhängigkeit von Δt Kurven konstruiert, die sich wie bekannte Nachbildungs- und Zerfallskurven behandeln lassen. Die Parameter dieser Funktionen sind die Halbwertszeit $T_{1/2}$ und die fraktionale Ausbeute Y_f , die an die Stelle des N_0 -Werts tritt. Die Analyse dieser Kurven wurde mit den Programmen FITEXS und FITBØ2 /39/ durchgeführt. Zur Verdeutlichung des Auswertewegs soll hier der Gang der graphischen Analyse ausführlich diskutiert werden, da diese auch für die Behandlung der Ketten 101-105 typisch ist.

Der Verlauf des Nb-Anteils der Kette 99 als Funktion der Verzögerungszeit ist in Abb. 7 dargestellt. Wegen des weiten Bereichs von Δt sind zwei Zeitausschnitte separat gezeichnet: Die obere Kurve (Abb. 7 a) überstreicht einen Bereich von 12 s bis 10 min und zeigt das Abklingen der beiden ^{99}Nb -Isomere nach dem vollständigen Zerfall der Vorläufer. Das Anfitten einer Exponentialsumme (FITEXS /39/) bringt folgende Ergebnisse für die fraktional kumulierten

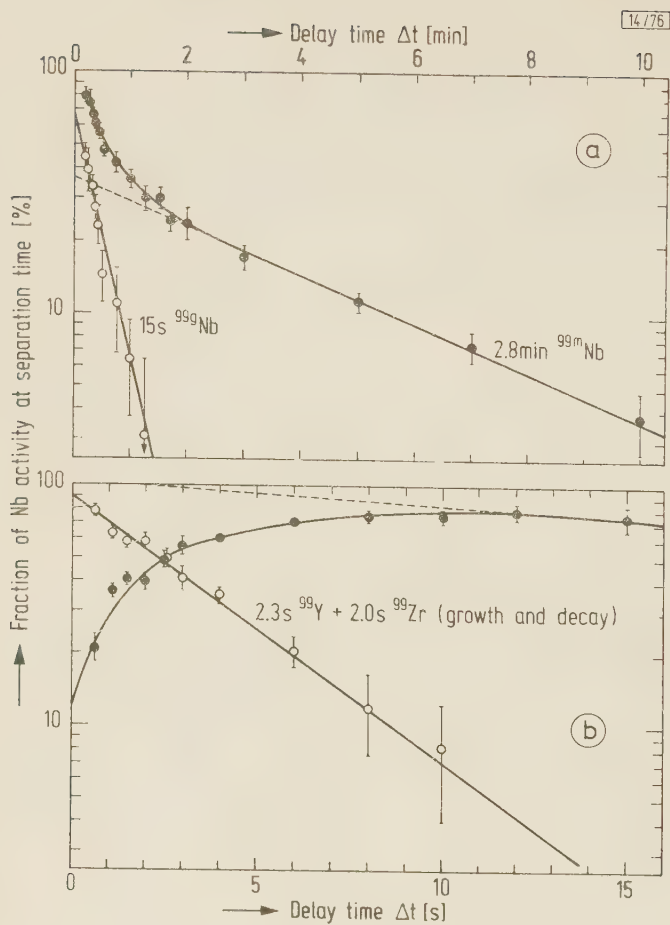


Abb. 7: Anteil der ^{99}Nb -Aktivität als Funktion der Verzögerungszeit Δt zwischen Bestrahlungsende und chemischer Trennung

Ausbeuten und die Halbwertszeiten:

$$Y_{fc}({}^{99m}\text{Nb}) = (36,4 \pm 4,5)\% \text{ und } T_{1/2}({}^{99m}\text{Nb}) = 2,8 \pm 0,3 \text{ min},$$

$$Y_{fc}({}^{99g}\text{Nb}) = (63,6 \pm 4,5)\% \text{ und } T_{1/2}({}^{99g}\text{Nb}) = 15 \pm 3 \text{ s}.$$

Ebenfalls in Abb. 7 a miteingezeichnet ist der Zerfall des 15 s - Isomers, der nach Abzug der 2,8 min Komponente von den Rohdaten resultiert.

Extrapoliert man den Gesamtverlauf der Nb-Daten auf $\Delta t=0$ und korrigiert für die Tatsache, daß die Vorläuferhalbwertszeiten gegenüber den 15 s von ${}^{99g}\text{Nb}$ nicht vernachlässigbar sind, so kann man als Differenz zu 100% eine fraktionell unabhängige Ausbeute von ${}^{99}\text{Mo}$ abschätzen:

$$Y_{fi}({}^{99}\text{Mo}) < 0,7\%.$$

In Abb. 7 b sind die experimentellen Ergebnisse für die kurzen Verzögerungszeiten ($\Delta t = 0,6 - 15 \text{ s}$) dargestellt. man erkennt deutlich die Nachbildung von ${}^{99}\text{Nb}$ aus seinen Vorläufern. Die obere gestrichelte Kurve in Abb. 7b ist die Extrapolation der Rohdaten aus Abb. 7 a auf $\Delta t = 0$ und repräsentiert die Summe aller Kettenglieder von Y bis Nb als Funktion von Δt . Sie wurde mit Hilfe von Gleichung 3.2, zunächst iterativ, beginnend mit Schätzwerten für die Vorläuferausbeuten berechnet:

$$Y_{fc}(Nb, \Delta t) =$$

$$\begin{aligned} & \left[(Y_{fi}(Y) + Y_{fi}(Zr)) P_m + Y_{fi}(Nb) \right] e^{-\lambda_{mNb} \Delta t} + Y_{fi}(Nb) e^{-\lambda_{gNb} \Delta t} + \\ & + P_g Y_{fi}(Zr) \left[e^{-\lambda_{Zr} \Delta t} + \frac{\lambda_{Zr}}{\lambda_{gNb} - \lambda_{Zr}} (e^{-\lambda_{Zr} \Delta t} - e^{-\lambda_{gNb} \Delta t}) \right] + \\ & + P_g Y_{fi}(Y) \left[e^{-\lambda_Y \Delta t} + \frac{\lambda_Y}{\lambda_{Zr} - \lambda_Y} (e^{-\lambda_Y \Delta t} - e^{-\lambda_{Zr} \Delta t}) + \right. \\ & + \frac{\lambda_Y \lambda_{Zr}}{(\lambda_{Zr} - \lambda_Y)(\lambda_{gNb} - \lambda_Y)} e^{-\lambda_Y \Delta t} + \frac{\lambda_Y \lambda_{Zr}}{(\lambda_Y - \lambda_{Zr})(\lambda_{gNb} - \lambda_{Zr})} e^{-\lambda_{Zr} \Delta t} + \\ & \left. + \frac{\lambda_Y \lambda_{Zr}}{(\lambda_Y - \lambda_{gNb})(\lambda_{Zr} - \lambda_{gNb})} e^{-\lambda_{gNb} \Delta t} \right]. \end{aligned} \quad (3.2)$$

Darin sind:

$Y_{fc}(Nb)$	Anteil Niob zur Zeit Δt nach Bestrahlungsende
P_g, P_m	Verzweigungsverhältnis im ^{99}Zr -Zerfall (siehe Kap. 3.4)
$Y_{fi}(Y) \dots$	fraktional unabhängige Ausbeute des betr. Nuklids
$\lambda_Y \dots$	Zerfallskonstanten

Die Differenz zwischen dieser Extrapolation und den experimentellen Daten (volle Punkte in Abb. 7b) ergibt den Verlauf der offenen Punkte, der das zeitliche Verhalten der Nb-Vorläufer widerspiegelt.

Drei Reaktionen tragen zu dieser Kurve bei:

1. unabhängig gebildetes ^{99}Y , welches in ^{99}Zr zerfällt,
2. ^{99}Zr aus dem Zerfall von ^{99}Y ,
3. unabhängig gebildetes ^{99}Zr .

Die Extrapolation auf $\Delta t = 0$ nach Anpassung von Gleichung 3.3, die diese drei Komponenten berücksichtigt:

$$Y_{fc}(Zr) = Y_{fc}(Y) e^{-\lambda_Y \Delta t} + Y_{fc}(Y) \frac{\lambda_Y}{\lambda_{Zr} - \lambda_Y} (e^{-\lambda_Y \Delta t} - e^{-\lambda_{Zr} \Delta t}) + Y_{fi}(Zr) e^{-\lambda_{Zr} \Delta t}, \quad (3.3)$$

liefert einen Wert für die fraktional kumulierte Ausbeute von ^{99}Zr :

$$Y_{fc}(^{99}\text{Y}) + Y_{fi}(^{99}\text{Zr}) = Y_{fc}(^{99}\text{Zr}) = (88,3 \pm 2,8)\%.$$

Als Rest zu 100% folgt dann eine unabhängige ^{99}Nb -Gesamtausbeute:

$$Y_{fi}(^{99}\text{Nb}) = (11,7 \pm 2,8)\%.$$

Die Zerlegung dieser komplexen Kurve selbst ist nur möglich mit Hilfe von experimentellen Daten aus schnellen Zr-Abtrennungen. Hier werden nur Nachbildung und Zerfall von ^{99}Zr , d. h. also die oben erwähnten Reaktionen 2 und 3, betrachtet. Die Ergebnisse in Abhängigkeit von Δt sind in Abb. 8a zu sehen (volle Punkte). Darüber ist der Kurvenverlauf eingezeichnet, der die Reaktionen 1 bis 3 darstellt und aus Abb. 7b entnommen wurde. Als Differenz dazwischen ergibt sich die reine Komponente 1, also der Zerfall von unabhängigen ^{99}Y (offene Punkte). Die Parameter dieser Kurve sind:

$$Y_{fc}(^{99}\text{Y}) = (31,4 \pm 3,9)\% \text{ und } T_{1/2}(^{99}\text{Y}) = 2,3 \pm 0,5 \text{ s.}$$

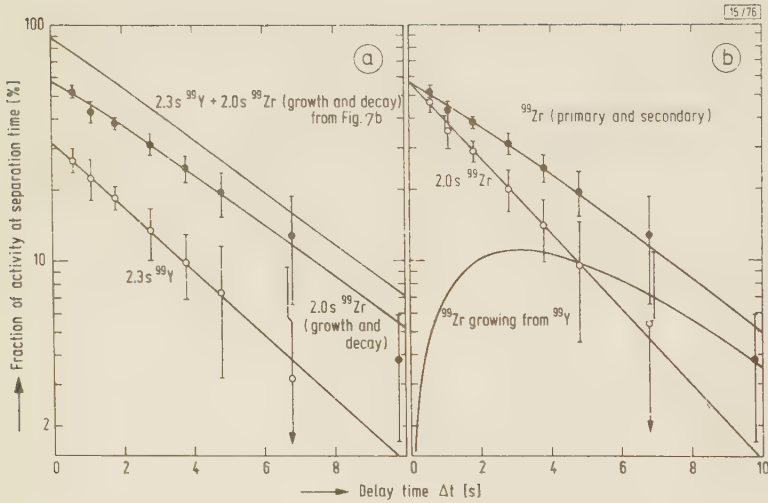


Abb. 8: Anteil der ^{99}Zr - und ^{99}Y -Aktivitäten als Funktion der Verzögerungszeit Δt zwischen Bestrahlungsende und Zr-Abtrennung

Diese Ergebnisse können nun dazu benutzt werden, um aus den Rohdaten die reine ^{99}Zr -Komponente zu ermitteln. In Abb. 8b ist deshalb unten die Nachbildung von ^{99}Zr aus ^{99}Y eingezeichnet. Wird diese von den vollen Punkten abgezogen, so bleibt der reine Zerfall von ^{99}Zr übrig (offene Punkte). Der Fit liefert folgende Resultate für fraktionale unabhängige Ausbeute und Halbwertszeit:

$$Y_{fi}(^{99}\text{Zr}) = (56,9 \pm 4,3)\% \text{ und } T_{1/2}(^{99}\text{Zr}) = 2,0 \pm 0,3 \text{ s.}$$

Der Verlauf der in Abb. 7 und 8 eingezeichneten Linien wurde nach Vorliegen aller Ausbeuten und Halbwertszeiten (Tab. 10 und 11) mit den Gleichungen 3.2 und 3.3 berechnet. Die Kurve durch die Rohdaten der Zr-Versuche wurden nach Gleichung 3.4a berechnet:

$$Y_{\text{Zr}}(\Delta t) = Y_{fi}(\text{Zr}) e^{-\lambda_{\text{Zr}}\Delta t} + Y_{fc}(\text{Y}) \frac{\lambda_{\text{Y}}}{\lambda_{\text{Zr}} - \lambda_{\text{Y}}} (e^{-\lambda_{\text{Y}}\Delta t} - e^{-\lambda_{\text{Zr}}\Delta t}). \quad (3.4 \text{ a})$$

In den genannten Abbildungen wird die gute Übereinstimmung zwischen Meßpunkten und Fitkurven deutlich. Dies ist vor allem bemerkenswert auch dann, wenn in die Berechnung zwei verschiedene Experimente (Nb- und Zr-Versuche) eingehen.

Die fraktionale kumulierte Ausbeute des 2,8 min $^{99\text{m}}\text{Nb}$ wurde darüberhinaus noch in einem methodisch unabhängigen Experiment ermittelt, das zur Messung der Ausbeuten von $^{96-98}\text{Nb}$ durchgeführt wurde. Aufbau und Ergebnisse sind in Kap. 5.1. ausführlich dargelegt; hier soll nur das Resultat für $^{99\text{m}}\text{Nb}$ vorweggenommen werden: $Y_{fc}(^{99\text{m}}\text{Nb}) = (36,6 \pm 2,2)\%$, in sehr guter Übereinstimmung mit dem hier erhaltenen Wert.

3.3. Primäre Speisung von ^{99m}Nb

Betrachtet man nach schnellen oder verzögerten Zr-Abtrennungen nicht, wie oben beschrieben, das ^{99}Mo als Endglied der Kette, sondern die 97,7 KeV γ -Linie /51, 52/ des ^{99m}Nb , so erhält man zunächst relative Werte für den Anteil des Zerfalls von ^{99}Zr ins ^{99m}Nb und die primäre Bildung des ^{99m}Nb aus der Spaltung.

Der Anteil an ^{99m}Nb - abgetrennt in Form seines Vorläufers - ist in Abb. 9 relativ zum Gesamtanteil an ^{99m}Nb in beiden Fraktionen als Funktion von Δt dargestellt. Die Daten repräsentieren den Anteil ^{99m}Nb , der über ^{99}Zr und $^{99}\text{Y} \rightarrow ^{99}\text{Zr}$ gebildet wurde, an der Gesamtmenge ^{99m}Nb . Die Kurve wird daher in Analogie zu Gleichung 3.4a durch den folgenden Ausdruck beschrieben:

$$F_s(^m\text{Nb}) = F(\text{Zr} \rightarrow ^m\text{Nb}) e^{-\lambda_{\text{Zr}} \Delta t} + \\ + F(\text{Y} \rightarrow \text{Zr} \rightarrow ^m\text{Nb}) \frac{\lambda_{\text{Y}}}{\lambda_{\text{Zr}} - \lambda_{\text{Y}}} (e^{-\lambda_{\text{Y}} \Delta t} - e^{-\lambda_{\text{Zr}} \Delta t}),$$

mit:

(3.4 b)

$F_s(^m\text{Nb})$ sekundäre ^{99m}Nb -Ausbeute

$F()$ Ausbeuteanteile an Zr bzw. Y, die in ^{99m}Nb zerfallen

Für $\Delta t = 0$ wird auch die Nachbildung aus ^{99}Y gleich null. Der extrapolierte Anfangswert der Kurve ($0,445 \pm 0,038$) stellt also gerade den Bruchteil an ^{99m}Nb dar, der aus primärem ^{99}Zr gebildet wurde. Mit Hilfe der fraktionalen Ausbeuten von ^{99}Zr (Tab.10) läßt sich der gesamte Anteil an

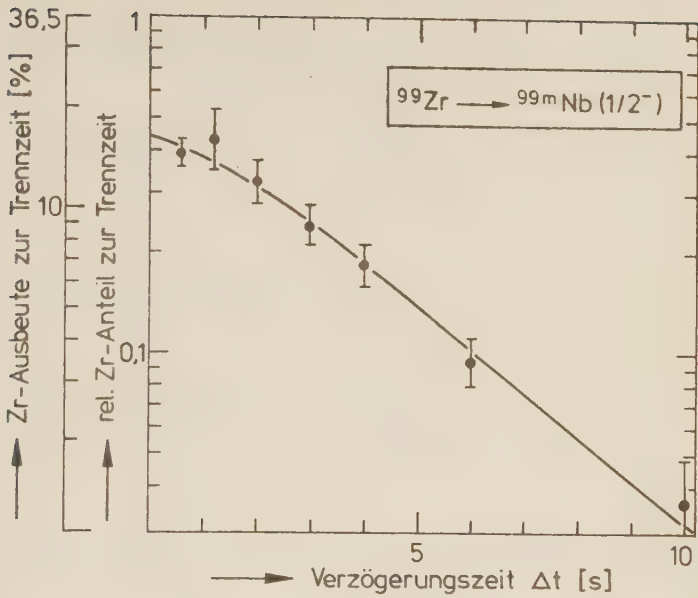


Abb. 9: ^{99}Zr -Anteil, der ins $^{99\text{m}}\text{Nb}$ zerfällt, als Funktion der Verzögerungszeit Δt

Rechte Ordinate: Relativer ^{99}Zr -Anteil bezogen auf $Y_{\text{fc}}(^{99\text{m}}\text{Nb}) = 1$;

Linke Ordinate: Fraktionale Ausbeute von ^{99}Zr , normiert auf $Y_{\text{fc}}(^{99\text{m}}\text{Nb}) = 36,5\%$

sekundärem ^{99m}Nb berechnen:

$$F_S(^m\text{Nb}) = F_S(^m\text{Nb}, t=0) \cdot \frac{Y_{fc}(\text{Zr})}{Y_{fi}(\text{Zr})} =$$

$$= 0,445 \cdot \frac{88,3}{56,9};$$

$$F_S(^m\text{Nb}) = 0,691 \pm 0,087.$$

Entsprechend folgt für die primäre Speisung von ^{99m}Nb :

$$F_P(^m\text{Nb}) = 1 - F_S(^m\text{Nb}) = 0,309 \pm 0,087.$$

Die beiden komplementären Anteile beziehen sich auf die Gesamtausbeute von ^{99m}Nb zu $(36,5 \pm 2,0)\%$ (Tab. 10). Dami-
terhält man für die fraktional sekundären bzw. unab-
hängigen ^{99m}Nb -Ausbeuten:

$$Y_{fs}(^{99m}\text{Nb}) = Y_{fc}(^{99m}\text{Nb}) \cdot F_S = (25,2 \pm 3,5)\%,$$

$$Y_{fi}(^{99m}\text{Nb}) = Y_{fc}(^{99m}\text{Nb}) \cdot F_P = (11,3 \pm 3,2)\%.$$

Als Differenz zur unabhängigen ^{99}Nb -Ausbeute folgt dann
für die primäre Speisung des Grundzustandes:

$$Y_{fi}(^{99g}\text{Nb}) = (0,4 \pm 4,2)\%.$$

Mit den hier gewonnenen Daten ist es bereits möglich, einige
Aussagen zu primären Hochspinausbeuten und Verzweigungsver-
hältnissen zu machen:

$$F_H = \frac{Y_{fi}(^{99g}\text{Nb})}{Y_{fi}(^{99}\text{Nb})} = 0,03 \pm 0,36.$$

Das Zweigungsverhältnis P_m aus dem β^- -Zerfall des ^{99}Zr , hier gegeben durch den Anteil, der den metastabilen Zustand speist, resultiert zu:

$$P_m = F_s(^m\text{Nb}, \Delta t=0) \frac{Y_{fc}(^{99m}\text{Nb})}{Y_{fi}(^{99}\text{Zr})} = 0,285 \pm 0,036.$$

3.4. Primäre Hochspinausbeute von ^{99}Nb und Verzweigungsverhältnis im β^- -Zerfall von ^{99}Zr

Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Isomeren- und Verzweigungsverhältnisse ist in γ -spektrometrischen Messungen nach schnellen Zr- und verzögerten Nb-Abtrennungen gegeben.

In einem ersten Experiment wurden 18,1 s nach Bestrahlungs-ende aus dem Spaltproduktgemisch Nb abgetrennt und die γ -Linien bei 97,7 und 137,7 keV, die zum Zerfall beider ^{99}Nb -Isomere gehören /52/, verfolgt. Die Messung konnte 21,8 s nach BE gestartet werden. Das isolierte und gemessene Nb setzte sich zusammen aus primärem Nb, d. h. aus direkt in der Spaltung gebildetem und aus sekundärem, d. h. aus Nb, das durch den Zerfall der Vorläufer gebildet wurde; es stellt also "kumuliertes" Nb dar. Gemessen wurde im Multispektren-Betrieb mit Detektor D. Zur Erreichung einer ausreichenden Statistik wurden 21 Versuche aufsummiert.

Im zweiten Experiment wurde unmittelbar nach Bestrahlungs-ende ^{99}Zr abgetrennt und nach einer Wartezeit von 16 s, also nach dem vollständigen Zerfall von ^{99}Zr , das ^{99}Nb , wie oben geschildert, gemessen. Hier wird also nur ^{99}Nb verfolgt, das "sekundär" gebildet wurde, d. h. nur aus dem Zerfall der Vorläufer. 32 aufsummierte Einzelversuche ergaben die erforderliche statistische Qualität.

Die durch das Auftreten der beiden Nb-Isomere komplexe Zerfallskurve der 97,7 keV γ -Linie, dargestellt in Abb. 10, wurde mit dem Programm 'FITEXS' /39/ analysiert. Die langlebige Komponente ^{99m}Nb der 137,7 keV Linie war, bedingt durch die geringe Linienintensität, zur Auswertung zu schwach. Anfangsaktivitäten und Halbwertszeiten sind als Ergebnisse der Fits in Tab. 7 zusammengestellt:

Isomer	"kumulierter" Fall (c)		"sekundärer" Fall (s)	
	$A_0/I/15s/$	$T_{1/2}$	$A_0/I/15s/$	$T_{1/2}$
^{99g}Nb	205800 ± 1029	$14,8 \pm 0,2s$	36844 ± 368	$15,1 \pm 0,4s$
^{99m}Nb	3976 ± 40	$2,74 \pm 0,05$ min	506 ± 12	$2,79 \pm 0,1$ min

Tab. 7: Ergebnisse der γ -spektroskopischen Experimente:

"kumulierter" Fall: Nb-Abtrennung nach 18 s

"sekundärer" Fall: Zr-Abtrennung, prompt,
Messung nach 16 s;

Für die folgenden Rechnungen wurde die absolute γ -Intensität des ^{99g}Nb für die 97,7 und 137,7 keV-Linien nach W. Herzog /52/ zu jeweils 1,0 verwendet. Die ebenfalls von W. Herzog /52/ gemessene absolute Intensität der 97,7 keV-Linie im Zerfall des ^{99m}Nb ($I_\gamma = 0,233$) wurde in diesem Zusammenhang mit Hilfe des im folgenden beschriebenen "kumulierten" Experiments neu bestimmt, da bei den Versuchen von W. Herzog /52/ der β^- -Grundzustandsübergang nur schlecht abzuschätzen war.

Die Zählraten aus der verzögerten Nb-Abtrennung ("kumulierter" Fall) stehen über die absoluten Intensitäten und Halb-

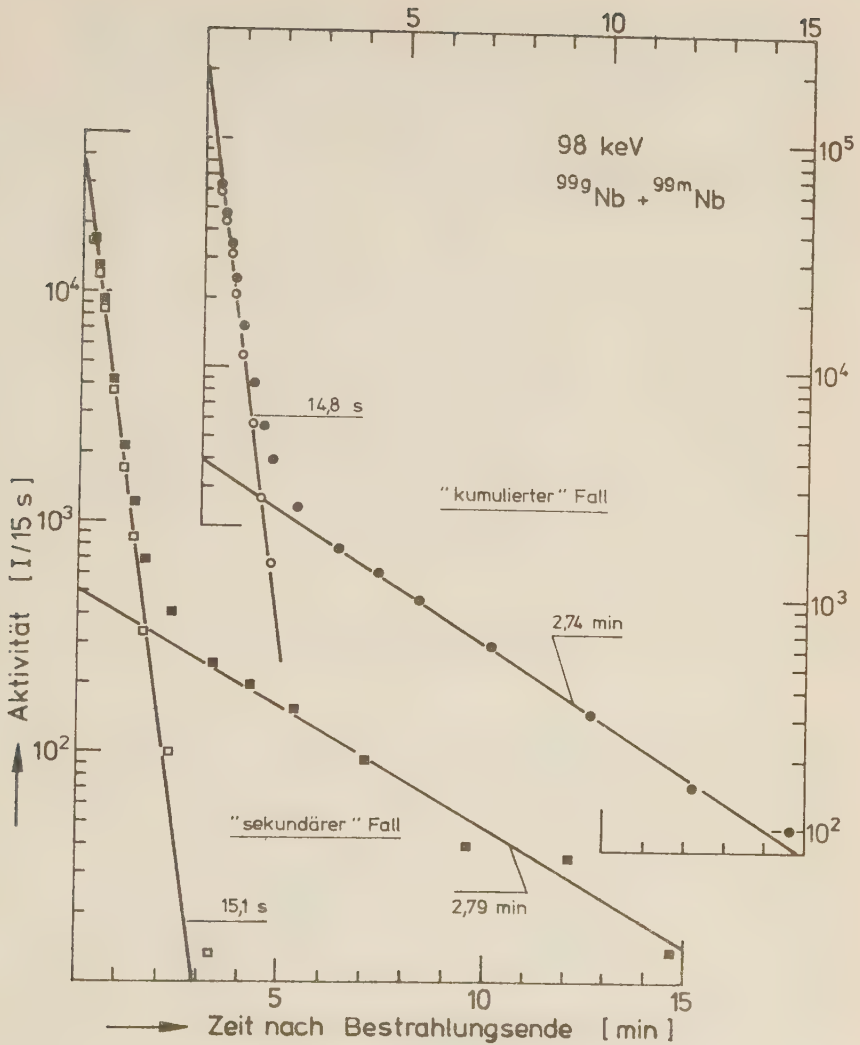


Abb. 10: Zerfallskurve der 98 keV γ -Linie von 15 s ^{99g}Nb und 2,8 min ^{99m}Nb

oben: "kumulierter" Fall, Nb-Abtrennung 18 s nach BE
 unten: "sekundärer" Fall, schnelle Zr-Abtrennung,
 Meßbeginn 16 s nach BE

wertszeiten mit den als eine Art "Atomzahl" fungierenden fraktional kumulierten Ausbeuten in Beziehung. Daraus folgt für die absolute Intensität für 97,7 keV von ^{99m}Nb :

$$I_{\gamma}^m(97,7) = \frac{A_{oc}^m \cdot I_{\gamma}^g \cdot T^m \cdot Y_{fc}^g}{A_{oc}^g \cdot T^g \cdot Y_{fc}^m} = 0,376 \pm 0,028 \quad (3.6)$$

mit:

A_{oc}^m, A_{oc}^g	Anfangsaktivitäten "kumulierter" Fall (Tab. 7)
T^m, T^g	Halbwertszeiten der beiden Isomere
I_{γ}^g	absolute Intensität von 97,7 keV von ^{99g}Nb ; 1,0 /52/
Y_{fc}^m, Y_{fc}^g	fraktional kumulierte Ausbeuten von ^{99m}Nb und ^{99g}Nb (Tab. 10)

Dieser Wert liegt deutlich höher als der von W. Herzog /52/ angegebene. Mit Hilfe der absoluten Linienintensität von 97,7 keV wurde bei den Experimenten in Kap. 5.1. die ^{97}Nb -Ausbeute auch relativ zur ^{99m}Nb -Ausbeute bestimmt. Die Ergebnisse stimmen sehr gut mit den Resultaten anderer Methoden (Messungen relativ zu ^{97}Zr und ^{98m}Nb) überein. Für die Hauptlinien von ^{99m}Nb ergeben sich dann aus den relativen Intensitäten von W. Herzog /52/ und der absoluten Intensität von 97,7 keV folgende neue Werte:

E_{γ} /keV/	I_{γ} absolut	Konversionskoeffizient α
97,7	0,376 $\pm$ 0,028	E2 /52/ : 1,319 /56/
137,7	0,0236 $\pm$ 0,0031	M1 /52/ : 0,103 /56/
253,4	0,0791 $\pm$ 0,0098	
351,3	0,0592 $\pm$ 0,0075	
451,0	0,0383 $\pm$ 0,0048	
525,5	0,0254 $\pm$ 0,0032	
534,4	0,0306 $\pm$ 0,0039	
631,8	0,0379 $\pm$ 0,0047	
792,9	0,0373 $\pm$ 0,0047	
2641,6	0,142 $\pm$ 0,018	
2851,6	0,122 $\pm$ 0,016	

Tab. 8: Absolute γ -Intensitäten des ^{99m}Nb

Zur Berechnung des Verzweigungsverhältnisses im ^{99}Zr -Zerfall wurden die Ergebnisse der schnellen Zr-Experimente ("sekundärer" Fall) herangezogen:

$$P_g = \frac{1}{\frac{A_{os}^m \cdot I_{\gamma}^g \cdot T^m}{A_{os}^g \cdot I_{\gamma}^m \cdot T^g} + 1} = 0,71 \pm 0,04, \quad (3.7)$$

mit: A_{os}^m, A_{os}^g Anfangsaktivitäten "sekundärer" Fall (Tab. 7)

Für P_m folgt dann entsprechend:

$$P_m = 0,29 \pm 0,04.$$

Die Speisung der ^{99}Nb -Isomere aus ^{99}Zr beträgt dann:

$$Y_{fs}(^{99m}\text{Nb}) = (25,6 \pm 3,6) \%$$

$$Y_{fs}(^{99g}\text{Nb}) = (62,7 \pm 4,0) \%$$

Unter Verwendung beider Experimente läßt sich das Isomerenverhältnis F_H von ^{99}Nb direkt ausrechnen. Dazu müssen die Teilchenzahlen der zwei Versuche aufeinander normiert werden. Der Normierungsfaktor dazu sieht dann wie folgt aus:

$$N = \frac{A_{oc}^g \cdot T^g \cdot I_k^m + A_{oc}^m \cdot T^m}{A_{os}^g \cdot T^g \cdot I_k^m + A_{os}^m \cdot T^m} \quad (3.8)$$

Für die primäre Hochspinausbeute erhält man dann:

$$\begin{aligned} F_H &= \frac{Y_{fi}(^{99g}\text{Nb})}{Y_{fi}(^{99}\text{Nb})} = \\ &= \frac{A_{oc}^g \cdot T^g - A_{os}^g \cdot N \cdot Y_{fc}(^{99}\text{Zr})}{\frac{A_{oc}^m \cdot T^m}{I_k^m} + A_{oc}^g \cdot T^g - \left(\frac{A_{os}^m \cdot T^m}{I_k^m} - A_{os}^g \cdot T^g \right) \cdot N \cdot Y_{fc}(^{99}\text{Zr})} \end{aligned} \quad (3.9)$$

Die Symbole wurden bereits bei den Gleichungen 3.6 und 3.7 erklärt. Die experimentellen Daten mit ihren Fehlern können Tab. 7 entnommen werden; notwendige Ausbeuten und Halbwertszeiten, ebenfalls mit Fehlern, aus den Tab. 11 und 10. Mit diesen Daten und den Gleichungen 3.8 und 3.9 resultiert dann:

$$F_H = 0,07 \pm 0,16.$$

Zur Berechnung des Fehlers dieser Größe wurde der dazu notwendige partielle Differentialquotient näherungsweise durch den Differenzenquotient ersetzt (Programm ISMV /39/):

$$\frac{\partial f}{\partial P_i} \approx \frac{f(P_1 \dots P_i + h \dots P_n) - f(P_1 \dots P_i \dots P_n)}{h} \quad (3.10)$$

Dabei wurde für die Werte von h eine gegen 0 konvergierende Zahlenfolge angenommen. Die Rechnung wurde abgebrochen, als die relative Abweichung aufeinanderfolgender Werte für den Differenzenquotienten kleiner als eine vorgegebene Schranke (10^{-3}) war.

Die Fehler der einzelnen Parameter können den Tab. 7, 8, 10 und 11 entnommen werden.

3.5. Ergänzende Messungen

Die unabhängige Ausbeute des ^{99}Rb wurde neuerdings von P. Peuser et al. /57, 58/ am Massenseparator für Spaltalkalien des Instituts für Physik, der am Mainzer TRIGA-Reaktor installiert ist, bestimmt: Für $Y_i(^{99}\text{Rb})$ resultiert $(2,5 \pm 1,3) \cdot 10^{-4}\%$ und mit einer Kettenausbeute von 6,14% /59/ für $A = 99$ eine fraktional unabhängige Ausbeute von $Y_{fi} = (4 \pm 2) \cdot 10^{-3}\%$.

Da nicht ganz auszuschließen ist, daß der Q_β -Wert des ^{99}Nb bei der Interpretation des Isomerenverhältnisses eine Rolle spielen könnte, wurde in Zusammenarbeit mit P. Peuser und H. Otto dieser Wert neu bestimmt. ^{99m}Nb -Quellen wurden, wie in Kap. 2.2.2 beschrieben, aus Spaltprodukten abgetrennt. Die β^- -Spektren wurden mit einem Teleskopaufbau, bestehend aus einem dünnen ΔE -Detektor und einem dicken Plastikszintillator, in Koinzidenz mit einem Ge(Li)-Detektor gemessen /60/.

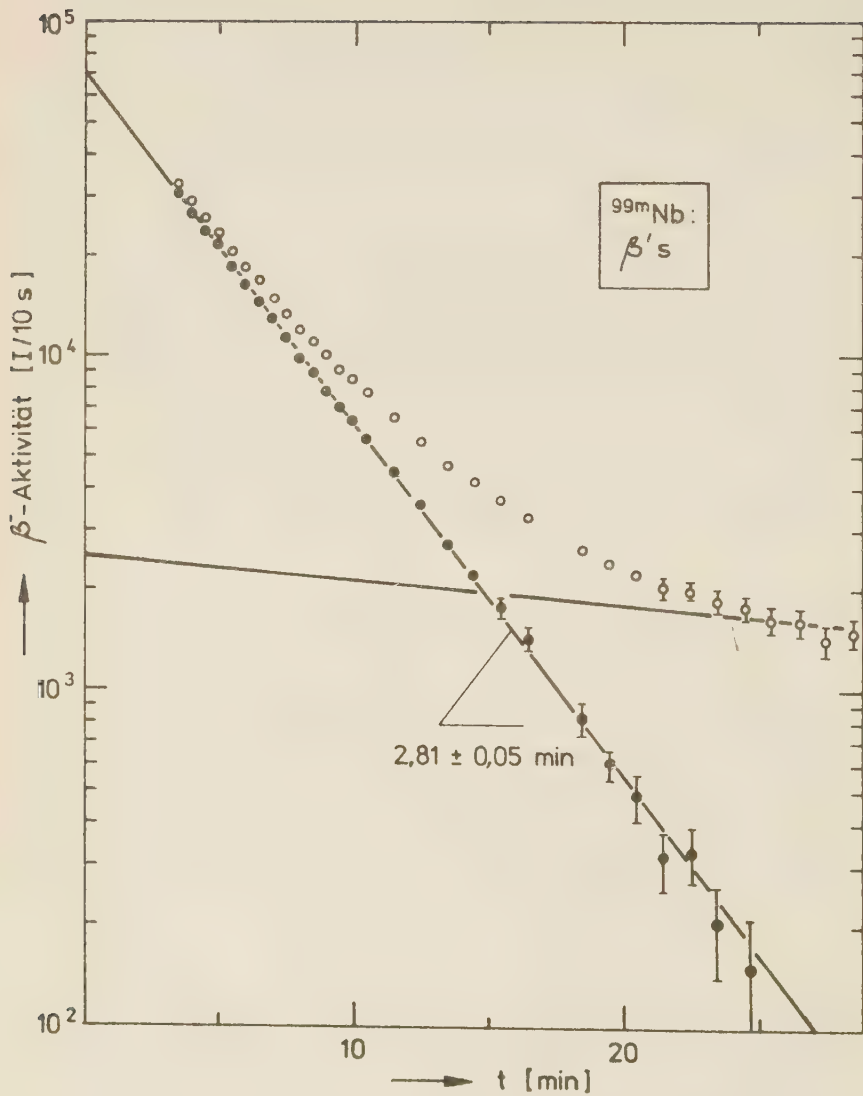


Abb. 11: Zerfallskurve des ^{99m}Nb : β^- -Messungen

Mit einer Endpunktenergie von $1,13 \pm 0,02$ MeV in Koinzidenz mit der 2851 keV-Linie /52/ wurde ein Q_{β} -Wert für ^{99m}Nb von $3,98 \pm 0,02$ MeV erhalten. Unter Berücksichtigung der Lage des isomeren Niveaus bei 365,2 KeV /61/ folgt als Q_{β} -Wert für ^{99}Nb : $3,61 \pm 0,02$ MeV /60/. Dieser Wert deckt sich nicht mit dem Resultat von W. Herzog /52/, der einen Q-Wert von 3,2 MeV fand, stimmt aber gut mit einer Messung der Massendifferenz von ^{99}Mo und ^{99}Nb /62/ überein.

Da die Halbwertszeit des ^{99m}Nb recht empfindlich in einige Rechnungen eingeht, wurde sie im Verlauf dieses Experiments, ebenfalls über β^- -Messungen nach chemischer Abtrennung, kontrolliert. Der Fit an die Daten der Zerfallskurve (FITEXS /39/) liefert für die Halbwertszeiten beider Komponenten: 55 min (im wesentlichen hervorgerufen durch ^{98}Nb (51,3 min /63/ und etwas ^{97}Nb (72,1 min /64/, aber geringe Ausbeute) und $2,81 \pm 0,05$ min für ^{99m}Nb , in guter Übereinstimmung mit anderen Meßverfahren (Tab. 11).

3.6. Diskussion

Alle Ergebnisse, die mit verschiedenen experimentellen Methoden in der Kette 99 erhalten wurden, sind in Tab. 9 zusammengestellt.

Die Übereinstimmung der Resultate aus den einzelnen Experimenten ist im allgemeinen sehr gut. Die Endergebnisse wurden durch gewichtete Mittelung erhalten.

Der Vergleich der Enddaten mit den publizierten Werten anderer Autoren ist in Tabelle 10 durchgeführt. Die Übereinstimmung ist auch hier gut, vielleicht mit Ausnahme der Gesamtausbeute des ^{99}Nb , die hier über den Literaturdaten liegt. Für das Verzweigungsverhältnis im ^{99}Zr -Zerfall lagen bisher keine Daten vor, ebenso für das Isomerenver-

hältnis des ^{99}Nb . Hier fällt auf, daß erstens der Nieder-
spinzustand bevorzugt ist und daß zweitens die Speisung
sehr gerichtet ist, d. h., daß nahezu ausschließlich ein
Zustand durch die Spaltung erreicht wird.

Die nach verschiedenen Methoden ebenfalls erhaltenen Halb-
wertszeiten sind in Tabelle 11 aufgelistet und mit Litera-
turwerten verglichen. Eine größere Abweichung wird nur beim
 ^{99}Y deutlich: Der Grund könnte die im Gegensatz zu Abfall-
messungen von γ -Linien sehr indirekte Methode der verzö-
gerten Trennungen sein. Auf die gemessene Ausbeute hat diese
Diskrepanz allerdings keinen Einfluß, da durch die kürzeste
Abtrennzeit von 0,6 s eine Extrapolation über eine große
Zeitspanne auf $\Delta t=0$ vermieden wird. Die Halbwertszeit von
 $^{99\text{m}}\text{Nb}$ wurde zu 2,8 min angenommen, während frühere Ergeb-
nisse meist etwas niedriger lagen. Da dieser Wert in einige
Rechnungen doch recht empfindlich eingeht, wurde versucht,
das Resultat durch eine Reihe unterschiedlicher Methoden
sicherzustellen. Die entsprechenden Daten sind in Tabelle
11 zu entnehmen. Die Abb. 12 zeigt einen Überblick der Kette
99 mit allen Ausbeuten, Verzweigungen und Halbwertszeiten.

Die Diskussion der Ladungsverteilung der Kette 99 soll im
Rahmen einer allgemeinen Betrachtung zusammen mit den Resul-
taten der übrigen, in dieser Arbeit untersuchten Isobaren-
ketten erfolgen (Kap. 6.1. und 6.2.).

Nuklid	Art des Ergebn.	Resultat, erhalten mit Methode*:				Gewicht. Mittel
		A	B	C	D	
^{99}Y	$Y_{fc}/\%$	31,4 $\underline{+3}$,9				31,4 $\underline{+3}$,9
^{99}Zr	$Y_{fi}/\%$	56,9 $\underline{+4}$,3				56,9 $\underline{+4}$,3
^{99}Zr	$Y_{fc}/\%$	88,3 $\underline{+2}$,8				88,3 $\underline{+2}$,8
^{99}Zr	P_m		0,285 $\underline{+0}$,036	0,29 $\underline{+0}$,04		0,29 $\underline{+0}$,03
^{99}Nb	$Y_{fi}/\%$	11,7 $\underline{+2}$,8				11,7 $\underline{+2}$,8
^{99m}Nb	$Y_{fi}/\%$		11,3 $\underline{+3}$,2	10,9 $\underline{+3}$,2		11,1 $\underline{+2}$,2
^{99m}Nb	$Y_{fc}/\%$	36,4 $\underline{+4}$,5			36,6 $\underline{+2}$,2	36,5 $\underline{+2}$,0
^{99g}Nb	$Y_{fi}/\%$		0,4 $\underline{+4}$,2	0,8 $\underline{+1}$,5		0,75 $\underline{+1}$,4
^{99g}Nb	$Y_{fc}/\%$	63,6 $\underline{+4}$,5			63,4 $\underline{+2}$,2	63,5 $\underline{+2}$,0
^{99}Nb	F_H		0,03 $\underline{+0}$,35	0,07 $\underline{+0}$,16		0,06 $\underline{+0}$,14
^{99}Mo	$Y_{fi}/\%$	< 0,7				< 0,7

- * Methoden:
- A verzögerte Zr-oder Nb-Abtrennungen, ^{99}Mo -Messung (Kap. 3.2.)
 - B verzögerte Zr-Abtrennungen, ^{99m}Nb -Messung (Kap. 3.3.)
 - C γ -spektrometrische Messungen nach schnellen Zr- und verzögerten Nb-Abtrennungen (Kap. 3.4.)
 - D Messungen relativ zu Ausbeuten der Masse 97 (Kap. 5.1.)

Tab. 9: Zusammenfassung der Ergebnisse der Kette 99 in der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{th},f)$ mit verschiedenen experimentellen Methoden

Nuklid	Diese Arbeit Ausbeuten fraktional %/ unabhängig kumuliert		Andere Autoren Ausbeuten fraktional %/ unabhängig kumuliert	
^{99}Rb	-	-	$(4+2) \cdot 10^{-3}/57,58/$	-
^{99}Sr	-	-	$0,7+0,4 \quad /22/$ $6,2+1,2 \quad /26/$	-
^{99}Y	-	$31,4+3,9$	$31,5+2,4 \quad /22/$ $34,3+2,5 \quad /26/$	-
^{99}Zr	$56,9+4,3$	$88,3+2,8$	$59,0+2,7 \quad /22/$ $53,6+2,5 \quad /26/$	-
^{99}Nb	$11,7+2,8$	(~100)	$8,8+1,8 \quad /22/$ $4,6+1,2 \quad /26/$	-
^{99m}Nb ($1/2^-$)	$11,1+2,2$	$36,5+2,0$	-	$33+3 \quad /46/$ $30 \quad /48/$ $32+2 \quad /47/$
^{99g}Nb ($9/2^+$)	$0,7+1,4$	$63,5+2,0$	-	-
^{99}Mo	$< 0,7$	(100)	$1,3+0,8 \quad /26/$	-

Tab. 10: Ausbeuten der Kette 99 in der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{th},f)$
im Vergleich mit Ergebnissen anderer Autoren

Nuklid	Diese Arbeit			Andere Autoren	
	Halbwertszeit	Meß- a) methode	Angenommener _{b)} Wert	Halbwertszeit	Meß- a) methode
⁹⁹ _Y	2,3 <u>±</u> 0,5 s	Y,N	2,3 <u>±</u> 0,5 s	1,6 <u>±</u> 0,2 s/54/	γ
				1,5 s/61/	γ
⁹⁹ _{Zr}	2,0 <u>±</u> 0,3 s	Y	2,0 <u>±</u> 0,3 s	2,0 <u>±</u> 0,2 s/31/	γ,N
				2,1 <u>±</u> 0,1 s/61/	
^{99m} _{Nb}	2,8 <u>±</u> 0,3 min	Y	2,8 <u>±</u> 0,05 min	2,3 <u>±</u> 0,3min/46/	Y
	2,81 <u>±</u> 0,05 min	β		2,6 <u>±</u> 0,2min/47/	Y
	2,79 <u>±</u> 0,1 min	γ (Zr)		2,6 <u>±</u> 0,2min/51/	γ
	2,74 <u>±</u> 0,05 min	γ (Nb)		2,66 <u>±</u> 0,01min/52/	γ,β
	2,76 <u>±</u> 0,08 min	(Kap.51)			
^{99g} _{Nb}	15 ± 3 s	Y	15,0 <u>±</u> 0,5 s	10 ± 2 s/46/	Y
	14,9 <u>±</u> 0,3 s	γ (Zr)		9 ± 2 s/49/	γ
	15,0 <u>±</u> 0,2 s	γ (Nb)		14,3 <u>±</u> 0,6 s/50/	γ
				15,2 <u>±</u> 0,4 s/52/	γ

a Meßmethoden: γ γ -Messungen } nach chemischer Abtrennung
 β β -Messungen }
Y Ausbeutemessungen (verzög. Abtrennungen)
N aus Nachbildung des Tochternuklids

b für alle Rechnungen verwendet

Tab. 11: Zusammenfassung und Vergleich der gemessenen Halbwertszeiten

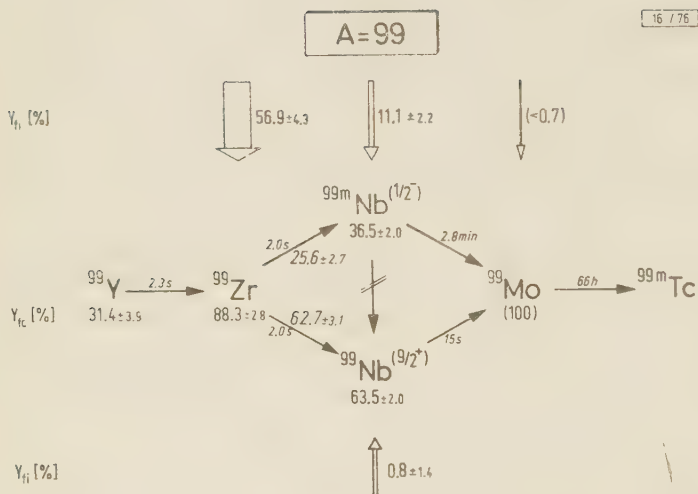


Abb. 12: Übersicht der Kette 99

4. Spaltausbeuten der Isobarenketten A = 101-105 in der Reaktion $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$

Die Gegend der Massen um 101-105 erweckt durch eine Reihe von Besonderheiten Interesse: Zum einen sind in diesem Gebiet weitere Nb-Isomere entdeckt worden, nämlich beim ^{102}Nb und ^{104}Nb /65/; zum anderen sind die genannten Massen bei der Spaltung von ^{235}U komplementär zur Region um die Masse A = 132, die durch die abgeschlossene 50-Protonen- und 82-Neutronen-Schale besonders gekennzeichnet ist und deren Nuklide dadurch eine eher sphärische Gestalt besitzen sollten. Im Gegensatz dazu wird für die Kerne um A $\approx$ 100 eine Grundzustandsdeformation postuliert /19/, die die primäre Speisung der verschiedenen Isomere beeinflussen könnte.

4.1. Bisherige experimentelle Situation

Radiochemische Messungen in den Ketten 101-105 sind bisher für ^{103}Mo und ^{105}Mo sowie für ^{102}Rh publiziert worden: J. D. Hastings et al. /66/ fanden für die fraktional kumulierten Ausbeuten von ^{103}Mo und ^{105}Mo (100,7 $\pm$ 1,4)% bzw. (98,3 $\pm$ 1,6)%, während J. A. Swartout et al. /67/ einen Grenzwert von $Y_i \leq 5 \cdot 10^{-7}\%$ für ^{102}Rh formulierten.

Unabhängige Ausbeuten für ^{104}Tc und ^{105}Tc wurden in jüngster Zeit von T. Fassbender /68/ gemessen: $Y_{fi} = (0,18 \pm 0,17)\%$ bzw. $(0,54 \pm 0,9)\%$ wurden als Ergebnis erhalten.

Auch für diese Ketten liegen Resultate physikalischer Experimente vor, die von den Gruppen H.-G. Clerc et al. /21,22/ und G. Siegert, H. Wollnik et al. /24-26/ publiziert wurden und die später im einzelnen diskutiert werden.

Messungen von Halbwertszeiten und γ -Spektren sowie von Verzweigungen im β^- -Zerfall von Zr-Isotopen wurden zuletzt von H. Ahrens et al. /65/ durchgeführt.

4.2. Meßprinzip und vorbereitende Versuche

Das Prinzip der Messungen in den Ketten 1o1-1o5 war das gleiche, wie das für die Masse 99 beschriebene Verfahren:

Nach der schnellen oder verzögerten Nb- oder Zr-Abtrennung zerfielen die kurzlebigen Nuklide in längerlebige Tochter- oder Enkelprodukte. Aus den Filtraten, die das ganze restliche Spaltproduktgemisch enthielten, wurde dann Mo oder, falls diese noch immer zu kurzlebig waren, Tc nach der Vorschrift aus Kap. 2.2.4 isoliert. Beide Fraktionen, Nb- oder Zr-Fraktion und Mo+Tc-Fraktion, wurden dann gleichzeitig an den Ge(Li)-Detektoren A und B gemessen, die relativ zueinander geeicht waren (Abb. 6).

Die γ -Linien der folgenden Tochter- oder Enkelnuklide wurden ausgewertet:

Masse	Ausgewertetes Nuklid	$T_{1/2}$	Ausgewertete γ -Linien
1o1	^{101}Mo	14,6 min /69/	191,9; 59o,3 keV /69,7o/
	^{101}Tc	14,2 min /69/	3o6,7 keV /69,7o/ von $^{101}\text{Mo} \rightarrow ^{101}\text{Tc}$
1o2	^{102}Mo	11,8 min /72/	475,2 keV /71/ von $5,3 \text{ s } ^{102g}\text{Tc}$ und 4,4 min ^{102m}Tc im Gleichgewicht mit ^{102}Mo
1o4	^{104}Tc	18,4 min /73/	358,o; 527,2; 535,1 keV /73/
1o5	^{105}Tc	7,6 min /74/	1o8,o; 143,2; 159,3 keV /74/

Tab. 12: Zerfallsdaten der zur Auswertung in den Massen 1o1-1o5 verwendeten Nuklide

Die Zeit für die Aufarbeitung der Filtrate betrug etwa 8-11 min ab Bestrahlungsende, gemessen wurde dann jeweils 20 min. Korrekturen für den Zerfall und Rückextrapolationen waren nicht notwendig, da beide Fraktionen immer gleichzeitig gemessen wurden. Zur Kontrolle wurden in einzelnen Fällen Abfallmessungen über etwa 2 h durchgeführt, um sicherzustellen, daß die ausgewerteten γ -Linien - vor allem in den Filtraten - nicht kontaminiert sind. Beispiele dafür sind in Abb. 13 dargestellt. Die unter diesen Bedingungen erhaltenen Halbwertszeiten stimmen gut mit den Literaturdaten überein (Tab. 12). Durch die geringe Kettenausbeute und die niedrige absolute Intensität der γ -Übergänge /74/ ist die Statistik bei ^{105}Tc nicht besonders gut.

Die Auswertung erfolgte prinzipiell nach dem Muster in Kap. 3.2.; Gleichungen 3.1 bzw. 3.2 veränderten sich allerdings durch die Verwendung von zwei Detektoren, die relativ zueinander geeicht waren (Kap. 2.5., Abb. 6):

$$Y_{\text{Nb}} (\Delta t) = \frac{A_{\text{Nb}}}{(A_{\text{Nb}} + A_{\text{F}} \cdot r_{\gamma}) \cdot f_{\text{CA}}} \quad , \quad (4.1)$$

mit:

r_{γ} Korrekturfaktor für relative
Eichung Det. A:B, berechnet
nach $I(\text{Det. A})/I(\text{Det. B})$ als
Funktion von E_{γ} (Abb. 6).

Die Zr-Experimente wurden analog ausgewertet.

Der enge Bereich der Halbwertszeiten der Tochter- und Enkel-nuklide von 7,6 bis 18,4 min machte es möglich, die Ketten 101, 102, 104 und 105 in einer gemeinsamen Experimentserie

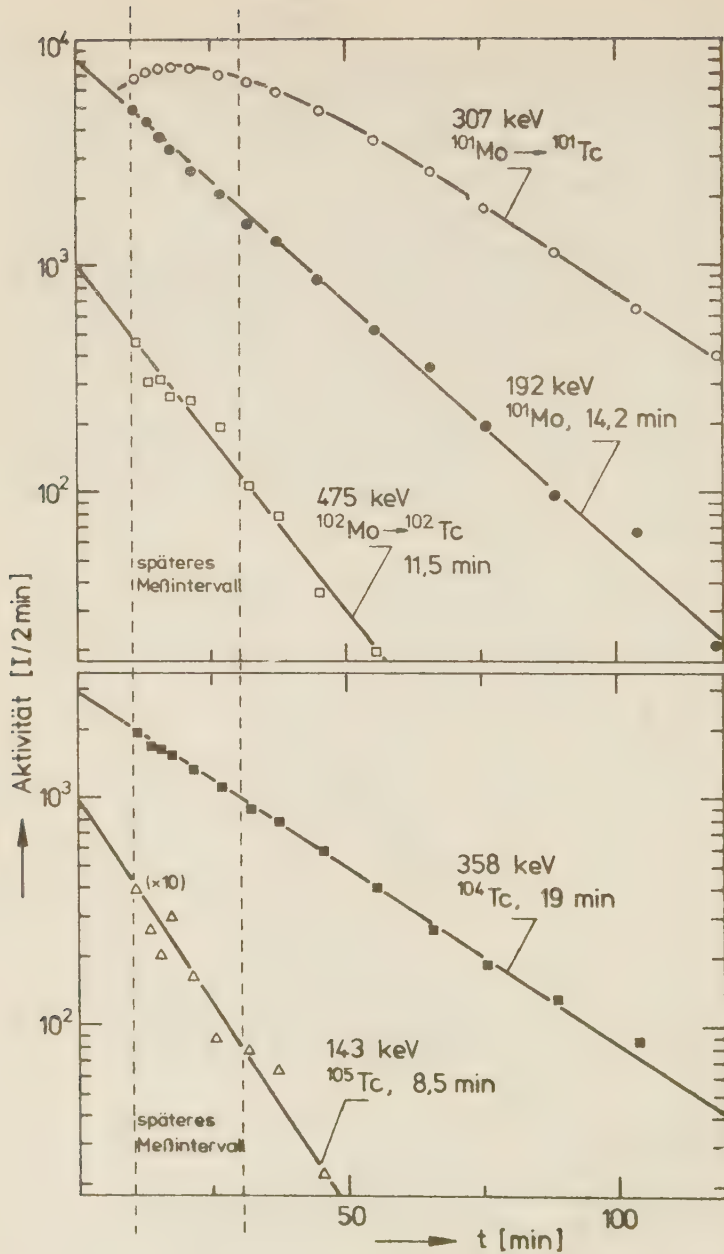


Abb. 13: Zerfallskurven der zur Auswertung der Isobarenketten 101 - 105 verwendeten Nuklide

zu bearbeiten. In der Masse 103 sind Mo und Tc zu kurzlebig, Ru dagegen mit 39 d /75/ zu langlebig. Deshalb entzieht sich diese Kette der gleichzeitigen Messung, ebenso wie die Masse 100, in der das Mo stabil ist und die beiden ^{100}Nb -Isomere /65/ zu kurzlebig sind.

Insgesamt wurden in dieser Versuchsserie 65 schnelle oder verzögerte Nb-Abtrennungen und 26 Zr-Experimente durchgeführt, davon 22 bzw. 8 mit der schnellen Variante der automatischen Apparatur. Die Verzögerungszeiten reichten von 0,6 bis 60 s, wobei jede Zeit mit 3-6 Einzelversuchen belegt wurde, die dann gemittelt wurden.

Die Ergebnisse der einzelnen Isobarenketten werden im folgenden getrennt besprochen.

4.3. Ausbeuten der Kette A = 101

Die Auswertung der Kette 101 wurde über die γ -Linien bei 191,9 und 590,3 keV von ^{101}Mo vorgenommen. Daneben wurde noch die 306,7 keV-Linie von ^{101}Tc ausgewertet, das aus ^{101}Mo nachgebildet wird. Obwohl beide Nuklide durch die fast identischen Halbwertszeiten nicht in ein Gleichgewicht kommen können, war es doch möglich, diesen Übergang zur Analyse heranzuziehen, da durch die Chemie mit den Filtraten an dem Verhältnis von ^{101}Mo zu ^{101}Tc nichts verändert wird. Der Kurvenverlauf (Abb. 13) ist daher in Nb- bzw. Zr-Fraktion und Filtratfraktion derselbe. Darüberhinaus ist die Übereinstimmung der Ergebnisse der einzelnen ausgewerteten γ -Linien sehr gut.

Die Resultate sind in Abb. 14 als Funktion der Verzögerungszeit Δt dargestellt. Der Verlauf des Zr-Anteils der Kette 101 ist oben (volle Punkte) eingezeichnet und zeigt einen glatten Abfall; eine Nachbildung aus ^{101}Y ist nicht zu erkennen. Aus den Fehlern an den ersten Punkten

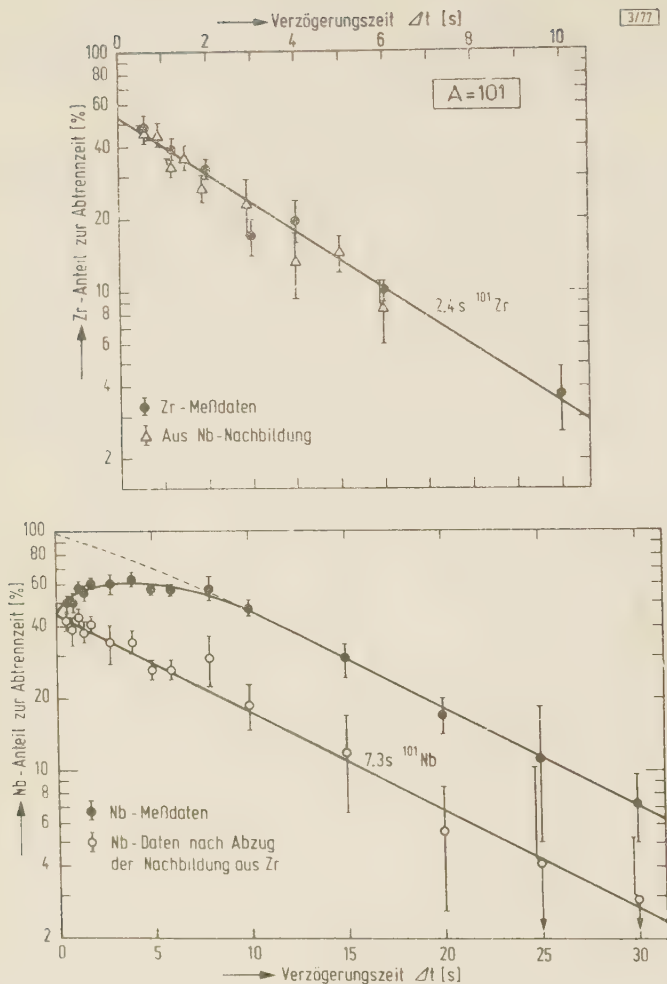


Abb. 14: Verlauf des Zr-Anteils (oben) und des Nb-Anteils (unten) der Kette $A = 101$ als Funktion der Verzögerungszeit Δt

läßt sich mit einer Halbwertszeit von ~ 1 s /76/ ein oberer Grenzwert für dessen Ausbeute abschätzen:

$$Y_{fc}(^{101}\text{Y}) \leq 6\%.$$

Das Anfitten einer Exponentialfunktion an die Zr-Daten ergibt für Ausbeute und Halbwertszeit:

$$Y_{fc}(^{101}\text{Zr}) = (55,5 \pm 4,2)\% \quad \text{und} \quad T_{1/2}(^{101}\text{Zr}) = 2,4 \pm 0,2 \text{ s.}$$

Den Verlauf des Nb-Anteils in Abhängigkeit von Δt zeigt Abb. 14 (unten) als volle Punkte. Man erkennt deutlich zu kürzeren Verzögerungszeiten die Nachbildung aus dem Vorläufer. Zieht man diesen Anteil, der aus den bereits gewonnenen Daten für ^{101}Zr zu berechnen ist, ab, so bleibt der glatte exponentielle Abfall des ^{101}Nb , dessen Analyse folgende Parameter liefert:

$$Y_{fi}(^{101}\text{Nb}) = (45,2 \pm 2,5)\% \quad \text{und} \quad T_{1/2}(^{101}\text{Nb}) = 7,3 \pm 0,9 \text{ s.}$$

Diese Gerade ist mit offenen Kreisen ebenfalls in Abb. 14 (unten) eingezeichnet.

Extrapoliert man den Verlauf der Nb-Rohdaten, der "kumulierten" Nb-Aktivität $Y_{\text{Nb}}(\Delta t)$, zusammengesetzt aus primärem Zr und Nb sowie nachgebildetem Nb, nach Gleichung 4.2 aus $\Delta t = 0$, so erhält man die gestrichelte Linie in Abb. 14 (unten).

$$Y_{fc}(^{101}\text{Nb}, \Delta t) = Y_{fc}(\text{Zr}) \left[e^{-\lambda_{\text{Zr}} \Delta t} + \frac{\lambda_{\text{Zr}}}{\lambda_{\text{Nb}} - \lambda_{\text{Zr}}} \cdot (e^{-\lambda_{\text{Zr}} \Delta t} - e^{-\lambda_{\text{Nb}} \Delta t}) \right] + Y_{fi}(\text{Nb}) e^{-\lambda_{\text{Nb}} \Delta t} \quad (4.2)$$

Darin sind:

y_{fi} (), y_{fc} () fraktionale Ausbeuten der betr. Nuklide

λ_{Zr} , λ_{Nb} Zerfallskonstanten.

Der Schnittpunkt mit $\Delta t = 0$ liefert einen Wert für die fraktional kumulierte Ausbeute von ^{101}Nb :

$$y_{fc}(^{101}\text{Nb}) = (98,6 \pm 1,4) \pm 3,5 \%$$

und als Differenz zu 100% eine unabhängige ^{101}Mo -Ausbeute, von

$$y_{fi}(^{101}\text{Mo}) = (1,4 \pm 3,5) \pm 1,4 \%$$

Aus der Differenz der Nb-Rohdaten zu dieser gestrichelten Linie resultiert der exponentielle Abfall der ^{101}Zr -Aktivität, der als offene Dreiecke in Abb. 14 (oben) eingetragen ist. Die Parameter dieser Kurve sind:

$$y_{fc}(^{101}\text{Zr}) = (52,5 \pm 3,0) \%$$
 und $T_{1/2}(^{101}\text{Zr}) = 2,3 \pm 0,3 \text{ s.}$

Alle Ergebnisse der Isobarenkette 101 sind in Tab. 13 zusammengestellt und können mit Literaturdaten verglichen werden.

Ähnlich wie in der Kette 99 ist die Übereinstimmung mit den Ergebnissen physikalischer Experimente meist gut, wobei allerdings Werte von H.-G. Clerc et al. /22/ eher reproduziert werden als die Messungen von H. Wollnik et al. /25/. Die Halbwertszeiten bestätigen die Ergebnisse von N. Kaffrell et al. für ^{101}Nb /20/ und ^{101}Zr /77/.

Nuklid	Diese Arbeit		Andere Autoren	
	frakt. kumulierte Ausbeute /%/	Halbwertszeit /s/	frakt. unabh. Ausbeute /%/	Halbwertszeit /s/
^{101}Y	≤ 6	-	$6,3\pm 1,3$ /25/	~ 1 /76/
^{101}Zr	$55,2\pm 4,2^{\text{b)}}$ $52,5\pm 3,0^{\text{c)}}$ $\rightarrow 53,4\pm 2,5^{\text{d)}}$	$2,4\pm 0,2^{\text{b)}}$ $2,3\pm 0,3^{\text{c)}}$ $\rightarrow 2,4\pm 0,3^{\text{d)}}$	$55,7\pm 3,9$ /22/ $57,5\pm 2,3$ /25/	$2,4$ /77/
^{101}Nb	$45,2\pm 2,5^{\text{a)}}$ $(98,6\pm 1,4)_{-3,5}$	$7,3\pm 0,9$	$39,4\pm 3,5$ /22/ $29,4\pm 1,8$ /25/	$7,1\pm 0,3$ /65/
^{101}Mo	$1,4\pm 3,5^{\text{a)}}$ $-1,4$	-	$1,9\pm 1,8$ /22/ $3,3\pm 1,0$ /25/	$14,6\text{min}$ /69/

a fraktionale unabhängige Ausbeute

b Methode: direkter Abfall

c Methode: Nachbildung des Tochternuklids

d gewichteter Mittelwert

Tab. 13: Ausbeuten und Halbwertszeiten der Isobarenkette 101

4.4. Ausbeuten der Kette A = 102

Die Analyse der Isobarenkette 102 erfolgte über die 475,2 keV γ -Linie von ^{102}Tc im Gleichgewicht mit ^{102}Mo .

Den Verlauf des ^{102}Zr -Anteils der Kette in Abhängigkeit von der Verzögerungszeit Δt zeigt Abb. 15. Man erkennt einen glatten exponentiellen Abfall, dessen Fit folgende Parameter liefert:

$$Y_{fc}(^{102}\text{Zr}) = (52,4 \pm 4,9)\% \quad \text{und} \quad T_{1/2}(^{102}\text{Zr}) = 2,2 \pm 0,3 \text{ s.}$$

Eine Nachbildung aus dem Vorläufer ^{102}Y konnte nicht beobachtet werden, was bei der geringen abgeschätzten Spaltausbeute auch nicht zu erwarten war. Das Ergebnis für ^{102}Zr ist deshalb praktisch als unabhängige Ausbeute zu betrachten.

Der Nb-Anteil der Kette 102 als Funktion der Verzögerungszeit ist in Abb. 16 dargestellt. Man erkennt bis zu einem Δt von etwa 3 s eine Nachbildung aus dem Vorläufer Zr. Die Extrapolation auf $\Delta t = 0$ führt - unter Berücksichtigung der Tatsache, daß der Zerfall des ^{102}Zr zunächst nur das 1,3 s ^{102}Nb -Isomer speist /65/ - zu einer fraktional unabhängigen Ausbeute von:

$$Y_{fi}(^{102}\text{Nb}) = (41,0 \pm 3,0)\%$$

Dieser Wert stellt also die Gesamtausbeute von ^{102}Nb dar. Die Auflösung der primären Speisung der beiden ^{102}Nb -Isomere war aus den in dieser Arbeit durchgeführten Experimenten allein nicht möglich. Aus den Resultaten von N. Kaffrell /77/, die am Massenseparator LOHENGRIN erhalten wurden, läßt sich nämlich eine deutliche primäre Bildung des 1,3 s Isomers ab-

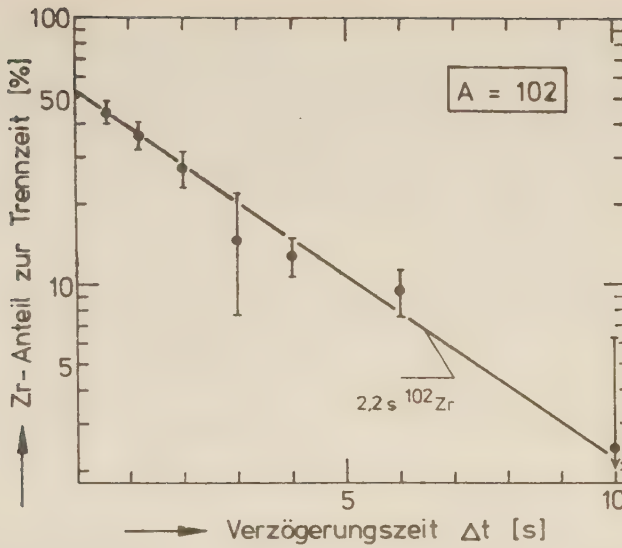


Abb. 15: Zr-Anteil der Kette 102 als Funktion der Verzögerungszeit Δt

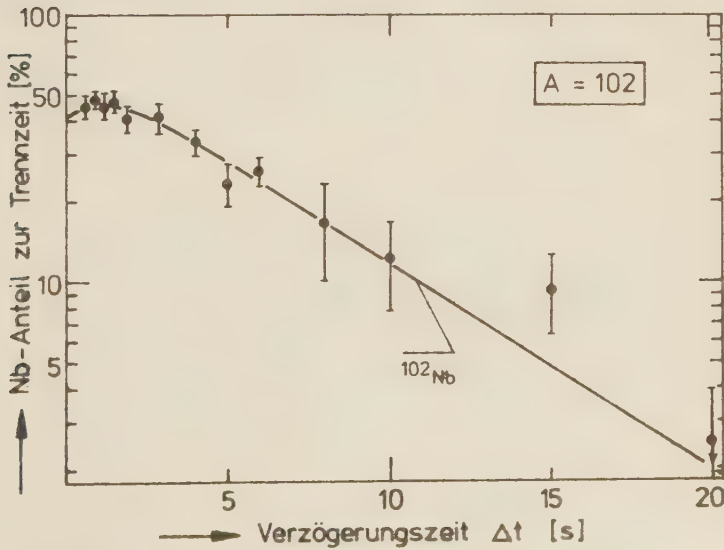


Abb. 16: Nb-Anteil der Kette 102 als Funktion der Verzögerungszeit Δt

Nuklid	Diese Arbeit		Andere Autoren	
	frakt. unabh. Ausbeute /%/	Halbwerts- zeit /s/	frakt. unabh. Ausbeute /%/	Halbwerts- zeit /s/
^{102}Y	-	-	$6,3\pm 1,2$ /25/	-
^{102}Zr	$52,4\pm 4,9$	$2,2\pm 0,3$	$50,8\pm 3,0$ /22/ $52,1\pm 2,3$ /25/	$2,2$ /77/
^{102}Nb	$41,0\pm 3,0$	-	$39,7\pm 2,5$ /22/ $36,8\pm 2,2$ /25/	$4,3\pm 1,3$ /65/
^{102}Mo	$6,6\pm 5,7$	-	$9,5\pm 1,7$ /22/ $4,8\pm 1,2$ /25/	$11,8\text{min}$ /72/
^{102}Rh	-	-	$< 5 \cdot 10^{-7}$ /67/	$2,9\text{a}+20\text{9d}$ /75/

Tab. 14: Ausbeuten der Halbwertszeiten der
Isobarenkette 102

leiten, die aber mit den hier diskutierten Ausbeutedaten nur bei Annahme eines isomeren Übergangs vom 1,3 s- zum 4,3 s-Zustand vereinbar wäre. Solange für den Anteil dieses isomeren Übergangs am Gesamtzerfall des 1,3 s-Isomers kein Wert existiert, ist keine genaue Analyse möglich.

Die fraktionale unabhängige Ausbeute von ^{102}Mo errechnet sich aus den experimentellen Zr- und Nb-Daten als Differenz zu 100%:

$$Y_{fi}(^{102}\text{Mo}) = (6,6 \pm 5,7)\%.$$

Alle Ergebnisse der Kette 102 sind in Tab. 14 zusammengefaßt und können mit den Resultaten anderer Autoren verglichen werden. Die gemessenen Ausbeuten stimmen mit Literaturangaben überein. Ebenso konnte die Halbwertszeit von ^{102}Zr /77/ reproduziert werden.

Auffallend ist in dieser Isobarenkette vor allem die hohe ^{102}Zr -Ausbeute: Von ^{99}Zr über ^{101}Zr bis ^{102}Zr bleiben deren Werte nahezu konstant.

4.5. Ausbeuten und Isomerenverhältnis der Kette 104

Die γ -Spektren der Kette 104 wurden ausgewertet über die 358,0 und 535,1 keV γ -Linien des 18,4 min ^{104}Tc /73/. Durch die geringe Kettenausbeute von nur noch 1,83% /59/ war die Statistik, verglichen mit den Isobarenketten 99-102, merklich schlechter.

In den Spektren der Zr-Abtrennungen konnte bei Verzögerungszeiten von 0,6 - 3 s praktisch keine Aktivität von 358,0 keV festgestellt werden. Aufgrund der Statistik (3σ) des Untergrundes an dieser Stelle konnte nur eine obere Grenze von

$\leq 2\%$ ermittelt werden. Mit einer ungefähren Halbwertszeit von ≤ 1 s /77/ folgt daraus ein Grenzwert für:

$$Y_{fc}(^{104}\text{Zr}) \leq 5\%$$

Die Ergebnisse der Nb-Abtrennungen sind in Abb. 17 als Funktion der Verzögerungszeit dargestellt. Man erkennt nur eine Komponente, deren Fit folgende Parameter liefert:

$$Y_f(^{104}\text{Nb}) = (42,5 \pm 3,0)\% \quad \text{und} \quad T_{1/2} = 4,9 \pm 0,6 \text{ s.}$$

Für eine 0,8 s-Komponente /65/ des ^{104}Nb -Hochspinisomers konnte kein Hinweis erhalten werden, ebensowenig wie für eine Nachbildung des 4,9 s ^{104}Nb aus ^{104}Zr /65, 77/.

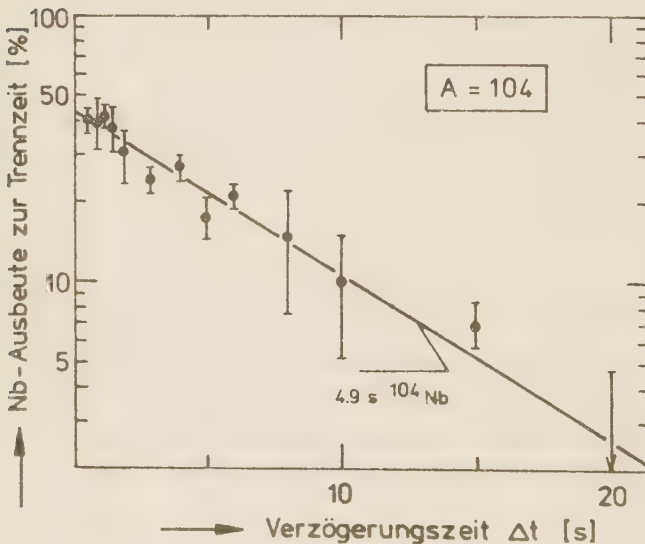


Abb. 17: Verlauf des Nb-Anteils der Kette 104 als Funktion der Verzögerungszeit Δt

Alleine mit diesen Informationen könnte folgende Interpretation der Befunde vorgeschlagen werden:

Die Nachbildung des $4,9 \text{ s } ^{104}\text{Nb}$ aus dem $\leq 1 \text{ s } ^{104}\text{Zr}$ /77/ und der Zerfall von primär gebildetem $0,8 \text{ s } ^{104}\text{Nb}$ kompensieren sich gerade, so daß der Verlauf der Gesamt-Nb-Aktivität einen linearen Verlauf vortäuscht. Da die Halbwertszeiten des kurzlebigen ^{104}Nb -Isomers und des ^{104}Zr etwa gleich sind, sollten sich dann auch deren unabhängige Ausbeuten entsprechen.

In Ref. /65/ wird allerdings eine komplexe Zerfallskurve der $192,2 \text{ keV } \gamma$ -Linie gezeigt, die eine deutliche $0,8 \text{ s}$ Komponente besitzt. Die Beiträge von $0,8 \text{ s-Nb}$ zu $4,9 \text{ s-Nb}$ (umgerechnet in Teilchenzahlen) verhalten sich etwa wie 2:1. Daraus läßt sich eine Linienintensität für $4,9 \text{ s } ^{104}\text{Nb}$ abschätzen zu:

$$I_{\gamma} (192 \text{ keV}, 4,9 \text{ s } ^{104}\text{Nb}) \approx \frac{100 \cdot 5}{2 \cdot 37,5} \approx 7\%,$$

relativ zu $4,9 \text{ s } ^{104}\text{Nb}$, $I_{\gamma} = 100\%$. Diesen starken Intensitätsunterschied für den $2^+ \rightarrow 0^+$ - Übergang im ^{104}Mo könnte man mit einem intensiven β^- -Grundzustandsübergang des $4,9 \text{ s}$ -Isomers erklären. Diese Annahme wäre dann plausibel, wenn es sich beim $4,9 \text{ s } ^{104}\text{Nb}$ um den Niederspinzustand ($I \approx 1$ oder 2) handelte. Diese Überlegung wird durch die Tatsache erhärtet, daß dieses Isomer auch aus $^{104}\text{Zr}(I = 0^+)$ nachgebildet wird /77/.

Unter diesen Voraussetzungen würde sich folgendes Bild der Kette 104 ergeben:

$$Y_{fc}(^{104}\text{Zr}) \approx Y_{fi}(0,8 \text{ s } ^{104}\text{Nb}) \leq 5\%,$$

$$Y_{fi}(4,9 \text{ s } ^{104}\text{Nb}) \geq 37,5\%$$

Nuklid	Diese Arbeit		Andere Autoren	
	frakt. unabh. Ausbeute %/	Halbwerts- zeit /s/	frakt. unabh. Ausbeute %/	Halbwerts- zeit /s/
$^{104}_{\text{Zr}}$	≤ 5 ^{b)}	$(\leq 1 \text{ s})$ ^{a)}	$6,2 \pm 1,6$ /22/	$\leq 1 \text{ s}$ /77/
$^{104}_{\text{Nb}}$	$42,5 \pm 3,0$	-	$34,7 \pm 2,6$ /22/	-
$^{104}_{\text{Nb}}$ Hochspin	≤ 5	$(0,8)$ ^{a)}	-	$0,8 \pm 0,2/65/$
$^{104}_{\text{Nb}}$ Niederspin	$\geq 37,5$	$4,9 \pm 0,6$	-	$4,8 \pm 0,4/65/$
$^{104}_{\text{Mo}}$	$\geq 52,5$	-	$56,1 \pm 3,5$ /22/	60 ± 2 /20/
$^{104}_{\text{Tc}}$	-	-	$3,0 \pm 2,3$ /22/ $0,18 \pm 0,17$ /68/	$18,4 \text{ min}/73/$

a für Analyse verwendet

b fraktional kumuliert

Tab. 15: Ausbeuten und Halbwertszeiten der
Isobarenkette 104

und als Differenz zu 99,82% ($=100 - Y_{fi}(^{104}\text{Tc})$)

$$Y_{fi}(^{104}\text{Mo}) \geq 52,5\%$$

Alle Resultate der Isobarenkette 104 sind in Tab. 15 zusammengestellt. Die Übereinstimmung ist trotz der verschiedenen Annahmen sowohl bezüglich der Ausbeuten /22/ als auch der Halbwertszeit /65/ recht gut. Es fällt weiterhin auf, daß das Niederspinisomer aus der Spaltung bevorzugt gespeist wird. Das Isomerenverhältnis von ^{104}Nb soll aber, der noch verbleibenden Unsicherheiten wegen, für die Diskussionen in Kap. 6.4. nicht verwendet werden.

4.6. Ausbeuten der Kette 105

Zur Auswertung der Kette 105 wurden die γ -Linien bei 108,0, 143,2 und 159,3 keV vom 7,6 min ^{105}Tc /74/ herangezogen. Die Impulsraten dieser Peaks waren sehr gering, einerseits durch die sehr kleine Kettenausbeute (0,963% /59/), andererseits durch die schwache absolute Intensität der betrachteten γ -Linien (12,0; 12,0; 7,5% /74/).

Diese Umstände führten zu den großen Fehlern an den experimentellen Daten der schnellen oder verzögerten Nb-Abtrennungen, die in Abb. 18 dargestellt sind. Das Anfitten eines exponentiellen Abfalls liefert als Parameter dieser Kurve:

$$Y_{fi}(^{105}\text{Nb}) = (29 \pm 6)\% \quad \text{und} \quad T_{1/2}(^{105}\text{Nb}) = 3 \pm 1 \text{ s.}$$

In den Spektren der Zr-Versuche konnten die obengenannten γ -Linien nicht beobachtet werden, was zu einem Grenzwert von $< 2\%$ für die unabhängige ^{105}Zr -Ausbeute führt.

Mit Hilfe des Wertes für ^{105}Tc von $Y_{fi} = (0,54 \pm 0,9)\%$ /68/ kann die fraktional unabhängige ^{105}Mo -Ausbeute berechnet werden zu:

$$Y_{fi}(^{105}\text{Mo}) = (70 \pm 7)\%.$$

Die Endresultate für die Kette 105 sind in Tab. 16 zusammengestellt. Der Vergleich mit den Daten von H.-G. Clerc et al. /22/ zeigt, daß der radiochemisch erhaltene Wert für ^{105}Nb deutlich höher liegt, was sich dann in der Berechnung der ^{105}Mo -Ausbeute ausdrückt. Für die Halbwertszeit von ^{105}Nb kann Übereinstimmung mit den Ergebnissen spektroskopischer Messungen /78/ festgestellt werden.

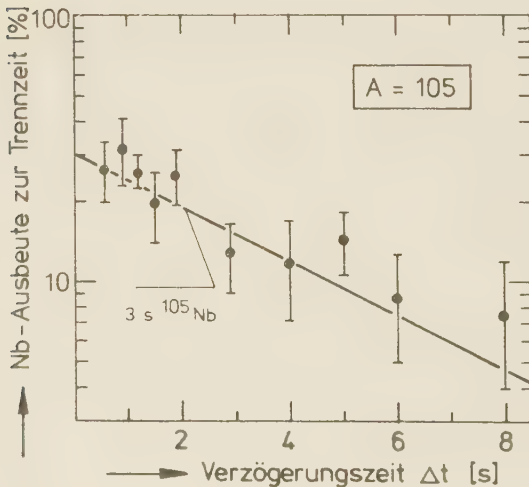


Abb. 18: Verlauf des Nb-Anteils der Kette $A = 105$ als Funktion der Verzögerungszeit Δt

Nuklid	Diese Arbeit		Andere Autoren	
	frakt. unabh. Ausbeute /%/	Halbwerts- zeit /s/	frakt. unabh. Ausbeute /%/	Halbwerts- zeit /s/
105_{Zr}	< 2	-	-	-
105_{Nb}	29+6	3+1	19,0+2,1 /22/	2,8 /78/
105_{Mo}	70+7	-	77,7+3,8 /22/	36+2 /20/
105_{Tc}	-	-	0,54+0,9 /68/ 3,3+2,3 /22/	7,6min/74/

Tab. 16: Ausbeuten und Halbwertszeiten der Isobaren-
kette 105

5. Spaltausbeuten der Isobarenketten 96-99
in der Reaktion $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{f})$

Die Spaltausbeuten der Nuklide ^{96}Nb - ^{98}Nb sind im Laufe der Zeit - bedingt durch die relativ langen Halbwertszeiten der meisten Isotope oder isomeren Zustände - von einigen Autoren gemessen worden. Dabei traten in jüngster Zeit, vor allem bei den leichten Nb-Nukliden, große Diskrepanzen zwischen den Resultaten radiochemischer und physikalischer Methoden auf. Ein Beitrag zur Klärung dieser Widersprüche und die Bestimmung der primären Speisung der isomeren Zustände von ^{97}Nb und ^{98}Nb war Ziel der im folgenden beschriebenen Experimente.

5.1. Ausbeuten von ^{97}Nb , $^{98}\text{Nb}(4^-)$ und $^{99\text{m}}\text{Nb}$

5.1.1 Bisherige experimentelle Situation

Radiochemische Messungen der ^{97}Nb -Ausbeuten wurden von A. C. Wahl et al. /79/ durchgeführt. Informationen über die Speisung von $^{97\text{m}}\text{Nb}$ waren in Anbetracht der kurzen Halbwertszeit von 53 s /75, 80/ und der zeitaufwendigen Chemie damals nicht erhältlich.

Schwierigkeiten bereitete die Zuordnung der beiden Isomere des ^{98}Nb , da beide Niveaus über β^- -Zerfall abgeregt werden und außerdem kein ausführliches Termschema des ^{98}Nb existiert. Von W. Herzog et al. /63/ wurden zwei Q_β -Werte publiziert, $4,8 \pm 0,2$ MeV für das 2,9 s Isomer und $4,5 \pm 0,2$ für den 51,3 min Zustand, die aber in Anbetracht der Fehler keine eindeutige Aussage zulassen. Daneben existieren Werte aus Kernreaktionen ($4,585 \pm 0,006$ MeV /62/) und aus β^- -Messungen nach Massentrennung ($4,58 \pm 0,20$ MeV /82/ für das 2,9 s-Isomer).

Für die Anregungsenergie des isomeren Niveaus fanden L. R. Medsker et al. /83/ nach einer $^{96}\text{Zr}(^3\text{He}, p)^{98}\text{Nb}$ -Reaktion 84 ± 4 keV.

Widersprüche treten auch bei der Zuordnung der Spins beider Isomere auf: Während W. Herzog et al. /63/ 1^+ und 4^- angaben, wurde von B. Singh et al. /84/ 5 für das 51 min Iso-mer publiziert und von L. R. Medsker et al. /83/ 5^+ für den angeregten Zustand.

Die Situation nach diesen neueren Veröffentlichungen stellt sich also wie folgt dar:

Angeregter Zustand: $^{98m}\text{Nb} (4^-, 5^+)$, 51,3 min,
 $Q_\beta = 4,669 \pm 0,007$ MeV;

Grundzustand: $^{98g}\text{Nb} (1^+)$, 2,9 s,
 $Q_\beta = 4,585 \pm 0,006$ MeV;

Anregungsenergie des isomeren Zustands:
 84 ± 4 keV.

Ein weiteres Problem bei der Messung der unabhängigen ^{98}Nb -Ausbeute stellt die sekundäre Bildung dieses Isomers aus dem Vorläufer 31 s ^{98}Zr /63/ dar. Für das Verzweungsverhältnis im β^- -Zerfall von ^{98}Zr sind nur Grenzwerte bekannt: Für P_m , also die relative sekundäre Speisung von ^{98}Nb , fanden W. Herzog et al. /63/ nach spektroskopischen Experimenten $\leq 0,01$, während H. Gäggeler et al /85/ argumentierten, daß die sekundäre Bildung nicht größer sein könne, als die kleinste gemessene ^{98m}Nb -Ausbeute, nämlich $\leq 0,0044$.

Bei der Diskussion der bisher publizierten experimentellen ^{98m}Nb -Ausbeuten wird nicht klar, ob die jeweiligen Autoren /D. E. Troutner' /81/ und T. Kaiser et al. /86, 87/ diese

sekundäre Speisung bei ihren Berechnungen berücksichtigt haben oder nicht.

Es scheint deshalb geboten, einen genaueren Wert für das Verzweigungsverhältnis im β^- -Zerfall von ^{98}Zr zu bestimmen.

Die Gesamtausbeuten von ^{97}Nb und ^{98}Nb wurden darüberhinaus auch mit physikalischen Methoden am Massenseparator LOHENGRIN ermittelt /22, 24-26/.

5.1.2 Meßprinzip, Auswertung und Ergebnisse

Nach der Pulsbestrahlung von 20-50 μg ^{235}U wurden die gebildeten Nb-Isotope von Hand wie in Kap. 2.2.2 beschrieben, abgetrennt. Der zeitliche Abfall der Aktivitäten wurde γ -spektrometrisch in einer abgeschirmten Meßposition mit Detektor B, D oder E verfolgt. Der Meßbeginn lag im allgemeinen 5-9 min nach Bestrahlungsende. Die chemische Ausbeute wurde, falls notwendig, mit $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ -Tracer ermittelt. In einigen Fällen wurde als möglicher Bezugsstandard aus den Filtraten das 17 h ^{97}Zr durch Mitfällung an $\text{Fe}(\text{OH})_3$ isoliert.

Um festzustellen, ob $^{98\text{m}}\text{Nb}$ aus ^{98}Zr nachgebildet wird, wurde eine Serie von 12 Versuchen durchgeführt mit verschiedenen Wartezeiten zwischen Pulsbestrahlung und chemischer Nb-Abtrennung von 1,9 s bis 2 min. Wegen des späten Meßbeginns wurde $^{97\text{m}}\text{Nb}$ natürlich nicht mehr beobachtet. Da es aber über einen isomeren Übergang in $^{97\text{g}}\text{Nb}$ zerfällt /64, 80/, stellt die hier gemessene Ausbeute des Grundzustands gleichzeitig die ^{97}Nb -Gesamtausbeute dar.

Als Beispiel für die Resultate dieser Experimente sind in Abb. 19 und 20 die Zerfallskurven der wichtigsten γ -Linien von ^{97}Nb bis $^{99\text{m}}\text{Nb}$ dargestellt. Die Literaturhalbwertszeiten (Tab. 17) wurden dabei gut reproduziert. Die aus den

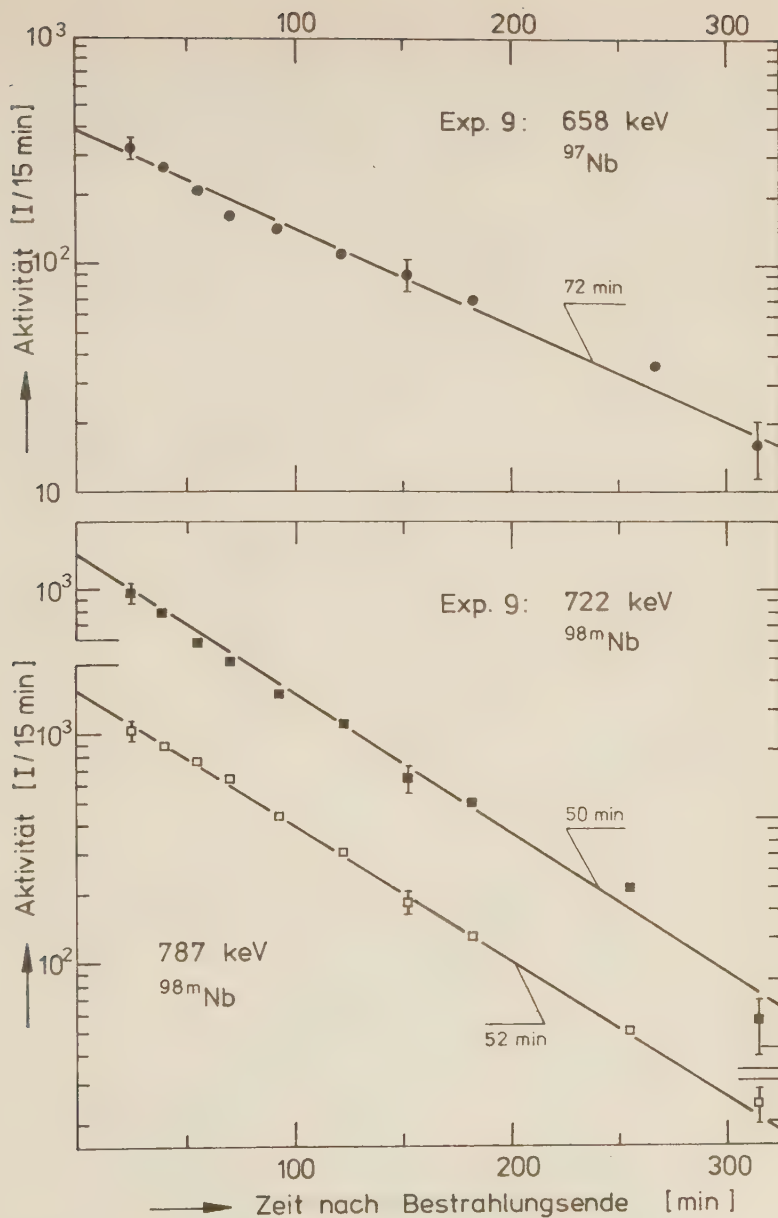


Abb. 19: Zerfallskurven der wichtigsten γ -Linien von ^{97}Nb (oben) und $^{98\text{m}}\text{Nb}$ (unten)

Repräsentative Fehler sind mit eingetragen

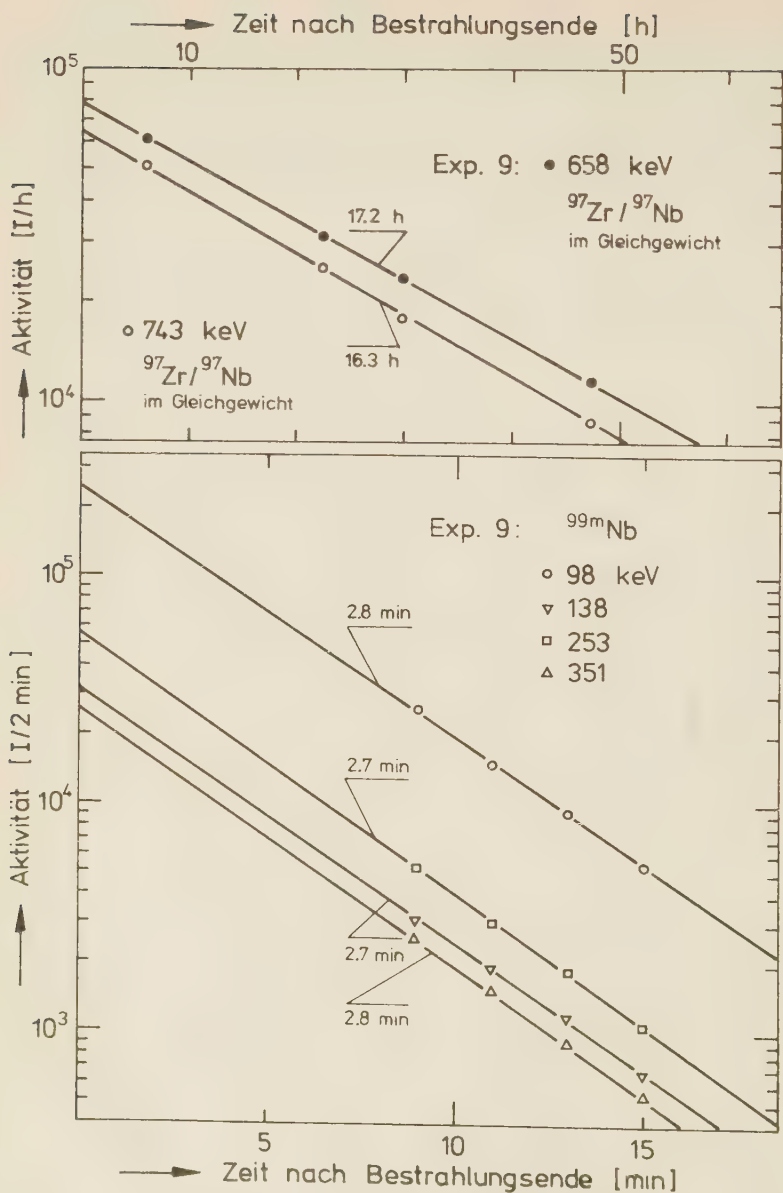


Abb. 20: Zerfallskurven der wichtigsten γ -Linien von ⁹⁷Nb (im Gleichgewicht mit ⁹⁷Zr), oben und ^{99m}Nb, unten.

Fehler: kleiner als Punktgröße

Zerfallskurvenanalysen ('FITEXS' /39/) resultierenden A_{BE} -Werte (Aktivität am Bestrahlungsende) wurden nach Gleichung 5.1 in relative Teilchenzahlen umgerechnet:

$$N^* = \frac{A_{BE} \cdot T_{1/2}}{t_M \cdot \ln 2 \cdot I_{\gamma}^{abs} \cdot \epsilon_{\gamma}} \quad , \quad (5.1)$$

mit:

N^*	relative Teilchenzahl des betr. Nuklids
A_{BE}	Aktivität am Bestrahlungsende
$T_{1/2}$	Halbwertszeit
t_M	Meßzeit
I_{γ}^{abs}	absolute Intensität der betr. γ -Linien
ϵ_{γ}	relative Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors bei E_{γ} .

Die für die Rechnungen notwendigen Konstanten sind (auch für ^{96}Nb und ^{97m}Nb) mit ihren Quellen in Tab. 17 aufgelistet.

Die so errechneten Teilchenzahlen sind für alle Versuche in Tab. 18 zusammengestellt. Die Fehler an den Daten stellen die statistische Abweichung vom Mittelwert der Ergebnisse der einzelnen γ -Linien dar. Für die Fehler an den Resultaten für ^{97}Nb wurde, da nur eine starke γ -Linie auswertbar war, ein konstanter relativer Fehler von 16% angenommen, entstanden aus der Fehlerfortpflanzung mit folgenden relativen Einzelabweichungen: Je 5% für A_{BE} und $T_{1/2}$, je 10% für I_{γ} und ϵ_{γ} .

Nuklid	E_{γ} /keV/	I_{γ}^{abs}	Konversions- koeffizienten /56/	$T_{1/2}$	Y_{fc} /%/	Kettenaus- beute /59/
$^{96}_{Nb}$	460,0	0,282 /88/		23,35 h /88/		A=96:6,28
	568,9	0,559 /88/				
	778,2	0,969 ₃ /88/				
$^{97m}_{Nb}$	743,4	1,0 /64,89/	0,015	60 s /80/ 53 s /75/		A=97:6,01
				72,1 min /64/		
	657,9	0,985 /64,90/				
$^{98m}_{Nb}$ ($4^{-}, 5^{+}$)	722,7	0,70 /63,84/		51,3 min /63,84/		A=98:5,81
	787,4	0,93 /63/				

Referenznuklide:					
^{97}Zr	657,9*	0,985	/64,89/	17 h	/64/ 99,79 /diese Arbeit/
	743,4*	0,945	/64,89/		
	* von ^{97}Nb im Gleichgewicht		0,015		
$^{93\text{m}}\text{Nb}$	97,7	0,376	/52,diese Arbeit/	2,8 min /diese Arbeit/	36,5 /diese Arbeit/
	137,7	0,0236			
	253,4	0,0791			
	351,3	0,0592			
	525,5	0,0254			
	534,4	0,0306			
	631,7	0,0379			
	792,9	0,0373			
		1,319		A=97:6,01	
		0,103		A=99:6,14	

Tab. 17: Konstanten für die Rechnungen in den Ketten 96-98 nach Gleichung 5.1 bis 5.3

Vers. Nr.	Detektor	Verzög. zeit Δt /s/	chem. Ausb. Nb/%	Bezugs- nuklid/ f) Meth.	Relative Teilchenzahlen für:			
					^{97}Nb a)	^{98}Nb b) (4-)	^{99}mNb c)	^{97}Zr d)
1	E abgesch.	1,9	-	^{99}mNb 2	-	$(8,05 \pm 1,13) \cdot 10^3$	$(1,226 \pm 0,097) \cdot 10^5$ e)	-
2	D	23	45,6	^{97}Zr 1	$(1,048 \pm 0,168) \cdot 10^3$	$(4,376 \pm 0,289) \cdot 10^3$	$(1,644 \pm 0,071) \cdot 10^5$	$(8,576 \pm 0,211) \cdot 10^5$
3	B	30	33,9	^{97}Zr 1	-	$(2,283 \pm 0,142) \cdot 10^3$	$(8,643 \pm 0,165) \cdot 10^4$	$(6,088 \pm 0,258) \cdot 10^5$
4	B	30	38,4	^{97}Zr 1	$(0,782 \pm 0,125) \cdot 10^3$	$(3,277 \pm 0,044) \cdot 10^3$	$(1,089 \pm 0,025) \cdot 10^5$	$(7,203 \pm 0,347) \cdot 10^5$
5	D	30	-	^{99}mNb 2	-	$(2,334 \pm 0,234) \cdot 10^4$	$(7,118 \pm 0,421) \cdot 10^5$	-
6	D	30	-	^{98}mNb 3	-	$(5,121 \pm 0,550) \cdot 10^3$	$(1,685 \pm 0,099) \cdot 10^5$	-
7	E	35	47,4	^{97}Zr 1	$(1,230 \pm 0,196) \cdot 10^3$	$(6,370 \pm 0,463) \cdot 10^3$	$(2,194 \pm 0,083) \cdot 10^5$	$(1,209 \pm 0,002) \cdot 10^6$
8	E	35	-	^{99}mNb 2	-	$(1,872 \pm 0,056) \cdot 10^4$	$(6,250 \pm 0,855) \cdot 10^5$	-

9	D	35	53,1	^{97}Zr 1	$(1,777 \pm 0,284) \cdot 10^3$	$(7,087 \pm 0,414) \cdot 10^3$	$(2,722 \pm 0,131) \cdot 10^5$	$(1,300 \pm 0,011) \cdot 10^6$
10	E	45	-	^{99}Nb 2	$(1,388 \pm 0,222) \cdot 10^3$	$(4,807 \pm 0,495) \cdot 10^3$	$(1,743 \pm 0,124) \cdot 10^5$	-
11	D	60	25,0	^{97}Zr 1	$(0,789 \pm 0,126) \cdot 10^3$	$(2,906 \pm 0,099) \cdot 10^3$	$(1,273 \pm 0,042) \cdot 10^5$	$(1,333 \pm 0,043) \cdot 10^6$
12	D	120	21,9	^{97}Zr 1	$(1,165 \pm 0,186) \cdot 10^3$	$(2,990 \pm 0,049) \cdot 10^3$	$(1,094 \pm 0,157) \cdot 10^5$	$(1,422 \pm 0,013) \cdot 10^6$

a Ausgewertet: 658 keV; Fehler konstant 16%, näheres siehe Text

b Ausgewertet: 722 + 787 keV

c Ausgewertet: Inner: 97, 137, 253, 351; meist: 525, 534, 631, 792 keV

d Ausgewertet: 743 + 658 keV; ^{97}Zr im Gleichgewicht mit ^{97}Nb

e Wegen Abschirmung (s. Abb. 5) nur 351, 525, 534, 631 ausgewertet

f siehe Seite 88

Eine Ausnahme vom bisher gesagten stellt Versuch 1 dar: Die Verzögerungszeit von 1,9 s wurde durch Abtrennungen mit der automatischen Apparatur erreicht. Darüberhinaus wurde der Detektor E mit 2 mm Blei und 1,5 mm Kupfer sowie 1 cm Plastik abgeschirmt, um die Elektronik nicht durch sehr starke niederenergetische γ -Anteile, vor allem hervorgerufen durch 15 s ^{99g}Nb (98 und 138 keV /52/), zu übersteuern. Die Efficiency-Funktion für diesen Aufbau ist in Abb. 5 miteingezeichnet. Eine ausreichende Statistik wurde durch Summation von 28 Einzelversuchen erreicht.

Zum Ausgleich systematischer Fehler durch die Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit wurden drei verschiedene Detektoren verwendet, die alle relativ geeicht waren.

Zur Berechnung von Ausbeuten mußten die so gewonnenen relativen Teilchenzahlen normiert werden. Dies konnte mit unterschiedlichen Vor- und Nachteilen auf drei Arten durchgeführt werden (Gleichungen 5.2 und 5.3):

1. Normierung auf ^{97}Zr , das als Standard aus den meisten Filtraten isoliert wurde. Vorteil: Die Auswertung von ^{97}Nb ist unabhängig von γ -Intensitäten und Detektornachweiswahrscheinlichkeit, da dieselben γ -Linien ausgewertet wurden (658, 743 von ^{97}Nb direkt, bzw. im Gleichgewicht mit ^{97}Zr). Außerdem war es hierbei noch möglich, zusätzliche Informationen über die ^{99m}Nb -Ausbeute zu erhalten. Bei dieser Auswertemethode war es allerdings notwendig, die chemische Nb-Ausbeute genau zu kennen, die mit $^{95}\text{Zr}/^{95}\text{Nb}$ -Indikator bestimmt wurde.
2. Normierung auf ^{99m}Nb , dessen fraktional kumulierte Ausbeute mit einer unabhängigen Methode in dieser Arbeit (Tab. 9 und 10) gemessen wurde. Vorteil: Die Auswertung ist unabhängig von der chemischen Ausbeute. Zur Ver-

meidung von systematischen Fehlern wurde hier eine ganze Reihe von γ -Linien zwischen 98 und 793 keV ausgewertet.

3. Normierung auf ^{98m}Nb , dessen fraktional unabhängige Ausbeute aus den übrigen Versuchen dieser Serie bekannt war. Vorteil: Eine weitere Information über die ^{99m}Nb -Ausbeute, unabhängig von der chemischen Ausbeute.

Die absoluten oder fraktionalen Ausbeuten wurden aus den Teilchenzahlen nach den folgenden Gleichungen berechnet:

$$Y_i^* / \% = \frac{N^*}{N_R} Y(R), \quad (5.2)$$

bzw.

$$Y_{fi}^* / \% = \frac{N^* \cdot K_R}{N_R \cdot K^*} Y_f(R), \quad (5.3)$$

mit:

N relative Teilchenzahl,

Y Ausbeute,

K Kettenausbeute,

Indizes:

i unabhängig,

f fraktional,

R Normierungsnuklid,

* interessierendes Nuklid.

Die Kettenausbeuten, entnommen aus Ref. /59/, sind in Tab. 17 aufgeführt. Es wurde pauschal ein relativer Fehler von je 5%, in Übereinstimmung mit Ref. /91/, angenommen.

Bei Versuch 1 wurde auf einen Wert von $Y_{fc}({}^{99m}\text{Nb})$ für $\Delta t = 1,9$ s bezogen, der nach Gleichung 5.4 berechnet wurde:

$$\begin{aligned}
 Y_{fc}({}^{99m}\text{Nb}, \Delta t) = & Y_{fi}({}^{99m}\text{Nb}) e^{-\lambda_{\text{Nb}} \Delta t} + \\
 & + P_m Y_{fi}({}^{99}\text{Zr}) \left[\frac{\lambda_{\text{Zr}}}{\lambda_{\text{Nb}} - \lambda_{\text{Zr}}} (e^{-\lambda_{\text{Zr}} \Delta t} - e^{-\lambda_{\text{Nb}} \Delta t}) \right] + \\
 & + P_m Y_{fc}({}^{99}\text{Y}) \left[\frac{\lambda_{\text{Y}} \lambda_{\text{Zr}}}{(\lambda_{\text{Zr}} - \lambda_{\text{Y}})(\lambda_{\text{Nb}} - \lambda_{\text{Y}})} e^{-\lambda_{\text{Y}} \Delta t} + \right. \\
 & \left. + \frac{\lambda_{\text{Y}} \lambda_{\text{Zr}}}{(\lambda_{\text{Y}} - \lambda_{\text{Zr}})(\lambda_{\text{Nb}} - \lambda_{\text{Zr}})} e^{-\lambda_{\text{Zr}} \Delta t} + \frac{\lambda_{\text{Y}} \lambda_{\text{Zr}}}{(\lambda_{\text{Y}} - \lambda_{\text{Nb}})(\lambda_{\text{Zr}} - \lambda_{\text{Nb}})} e^{-\lambda_{\text{Nb}} \Delta t} \right] \quad (5.4)
 \end{aligned}$$

Die Bedeutung der Symbole ist bereits in Kap. 3. und 4. erklärt. Mit den Daten aus Tab. 10 und 11 wurde als Normierungswert $(20,1 \pm 5,7)\%$ erhalten.

Die so errechneten Ausbeutewerte sind für die einzelnen Versuche und die verschiedenen Verzögerungszeiten in Tab. 19 zusammengestellt. Die Resultate für ${}^{97}\text{Nb}$ wurden für die Nachbildung aus ${}^{97}\text{Zr}$ während der Zeit zwischen Pulsbestrahlung und chemischer Trennung korrigiert.

Die Endergebnisse zeigen, daß zwischen den drei Auswertemethoden keine signifikanten Unterschiede bestehen, daß also systematische Fehler als weitgehend ausgeschlossen gelten können.

Die Ausbeuten von ${}^{97}\text{Nb}$ und ${}^{98m}\text{Nb}$ sind als Funktion der Verzögerungszeit in Abb. 21 dargestellt. In beiden Fällen wird

Vers. Nr.	Verzög. zeit Δt /s/	Fraktional unabhng. (kumulierte) Ausbeute %/			
		^{97}Nb	^{97}Nb (unab. ^{a)})	$^{98\text{m}}\text{Nb}$	$^{99\text{m}}\text{Nb}$ (kum)
1	1,9	-	-	1,39 $\pm$ 0,40	*
2	23	0,24 $\pm$ 0,03	0,21 $\pm$ 0,03	1,03 $\pm$ 0,11	*
3	30	-	-	1,02 $\pm$ 0,10	*
4	30	0,26 $\pm$ 0,04	0,23 $\pm$ 0,04	1,22 $\pm$ 0,11	38,8 $\pm$ 3,4
5	30	-	-	1,26 $\pm$ 0,17	*
6	30	-	-	*	33,6 $\pm$ 4,7
7	35	0,21 $\pm$ 0,04	0,18 $\pm$ 0,04	1,11 $\pm$ 0,11	37,4 $\pm$ 3,0
8	35	-	-	1,12 $\pm$ 0,16	*
9	35	0,26 $\pm$ 0,04	0,22 $\pm$ 0,04	1,06 $\pm$ 0,10	38,5 $\pm$ 3,3
10	45	0,30 $\pm$ 0,04	0,25 $\pm$ 0,04	1,06 $\pm$ 0,15	*
11	60	0,24 $\pm$ 0,04	0,17 $\pm$ 0,04	0,90 $\pm$ 0,07	37,3 $\pm$ 3,1
12	120	0,37 $\pm$ 0,06	0,24 $\pm$ 0,06	0,99 $\pm$ 0,07	34,2 $\pm$ 5,6

* Normierungsnuklid

a korrigiert fr den Zerfall des ^{97}Zr in ^{97}Nb whrend der Verzgerungszeit

Tab. 19: Fraktionale Ausbeuten von ^{97}Nb , $^{98\text{m}}\text{Nb}$ und $^{99\text{m}}\text{Nb}$ bei verschiedenen Verzgerungszeiten

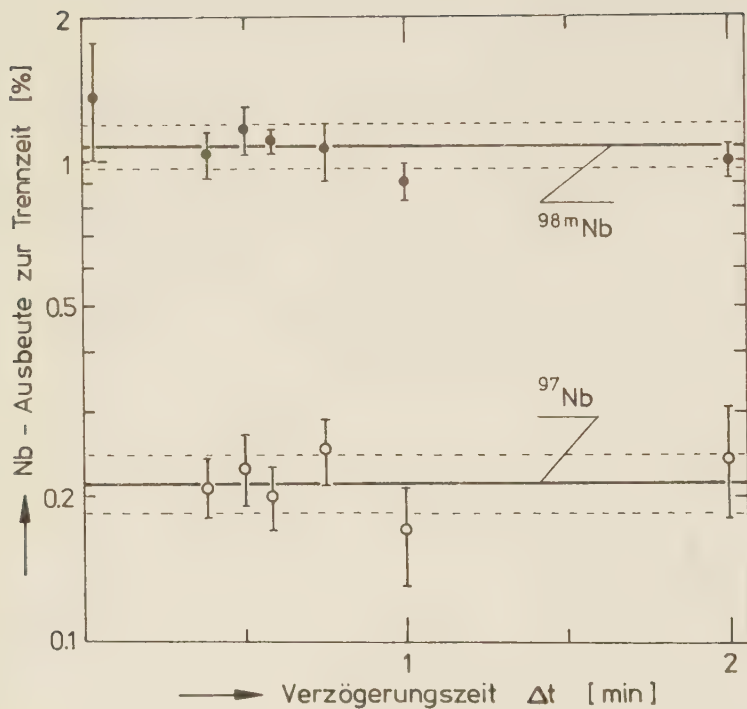


Abb. 21: ^{97}Nb -(unten) und ^{98m}Nb -Ausbeuten (oben) als Funktion der Verzögerungszeit Δt
 (^{97}Nb -Ausbeuten sind korrigiert für die Nachbildung aus ^{97}Zr während Δt)

ein linearer Verlauf beobachtet: Für ^{97}Nb entspricht dies - nach erfolgter Korrektur für die Nachbildung aus ^{97}Zr - der Erwartung; für $^{98\text{m}}\text{Nb}$ bedeutet dies, daß dieses Isomer offenbar nicht aus dem Vorläufer 31 s ^{98}Zr nachgebildet wird. Als fraktional unabhängige Ausbeuten konnten daher die einfachen Mittelwerte der einzelnen Versuche angesehen werden; das ergab die folgenden Ergebnisse:

$$Y_{fi} (^{97}\text{Nb}) = (0,21 \pm 0,03)\%$$

$$Y_{fi} (^{98}\text{Nb}) = (1,08 \pm 0,11)\%.$$

Als Mittelwert der kumulierten $^{99\text{m}}\text{Nb}$ -Ausbeute, die als Kontrolle für die Experimente in Kap. 3. dienen kann, resultiert:

$$Y_{fc} (^{99\text{m}}\text{Nb}) = (36,6 \pm 2,2)\%$$

Dieses Ergebnis stimmt sehr gut mit den auf einem anderen Wege erhaltenen Daten (Kap. 3.2. und Tab. 9 und 10) überein.

Als Grenzwert für die Verzweigung im β^- -Zerfall des ^{98}Zr in $^{98\text{m}}\text{Nb}$ konnte der Fehler an der $^{98\text{m}}\text{Nb}$ -Ausbeute angenommen werden:

$$P_m \leq 0,0011.$$

Der Vergleich mit den Literaturdaten, die zusammen mit den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit in Tab. 22 aufgenommen sind, soll im Anschluß an die beiden folgenden Kapitel durchgeführt werden.

5.2. Die Ausbeute des ^{97m}Nb

Zur Messung der Ausbeute des 53 s ^{97m}Nb -Isomers /75, 80/ wurden zwei verschiedene Experimentserien durchgeführt.

Zunächst wurden nach Pulsbestrahlungen von $5\mu\text{g } ^{235}\text{U}$ die gebildeten Nb-Isotope von Hand chemisch abgetrennt, wie in Kap. 2.2.2 beschrieben. Der mittlere Trennzeitpunkt lag bei 30 s, Meßbeginn war 60 s nach Bestrahlungsende. Die Nb-Proben wurden 4 x 1 min lang γ -spektrometrisch (Detektor D) gemessen, im Anschluß daran nach einer Wartezeit von 1 min weitere 15 min zur Aufnahme der Referenznuklide ^{97}Nb , ^{98m}Nb und ^{99m}Nb . Insgesamt wurden 5 Versuche aufsummiert.

Der 743 keV-Peak des ^{97m}Nb konnte ebensowenig wie ein zeitlicher Abfall mit ca. 1 min Halbwertszeit beobachtet werden. Deshalb wurden die vier ersten Spektren aufsummiert und der 3σ -Wert des Untergrunds an dieser Stelle als Zählrate verwendet. Dieses Spektrum der Nb-Fraktion, beschränkt auf den interessanten Bereich um 743 keV, ist in Abb. 22 dargestellt. Zugeordnet sind darin neben einigen schwächeren Linien des ^{99m}Nb /52/ auch die Linien des ^{98m}Nb /63/, die aber durch die Kürze der Meßzeit noch kaum erkennbar sind.

Die aus den Peak-Integralen und Extrapolationen auf Bestrahlungsende errechneten relativen Teilchenzahlen (Gleichung 5.1 und Tab. 17) für ^{97m}Nb und die Bezugsnuklide sind in Tab. 20 aufgelistet.

Bei dem gerade beschriebenen Experiment machte sich störend der starke Anteil an $^{99m+g}\text{Nb}$ bemerkbar, der die verwendbare Quellstärke wesentlich beschränkte. Um stärkere Proben einsetzen zu können, die ^{97}Nb und ^{98}Nb mit ihren kleinen Ausbeuten stärker hervortreten lassen, wurde in einem zweiten Experiment der Detektor E mit einer Abschirmung von 2 mm Pb, 1,5 mm Cu und 1 cm

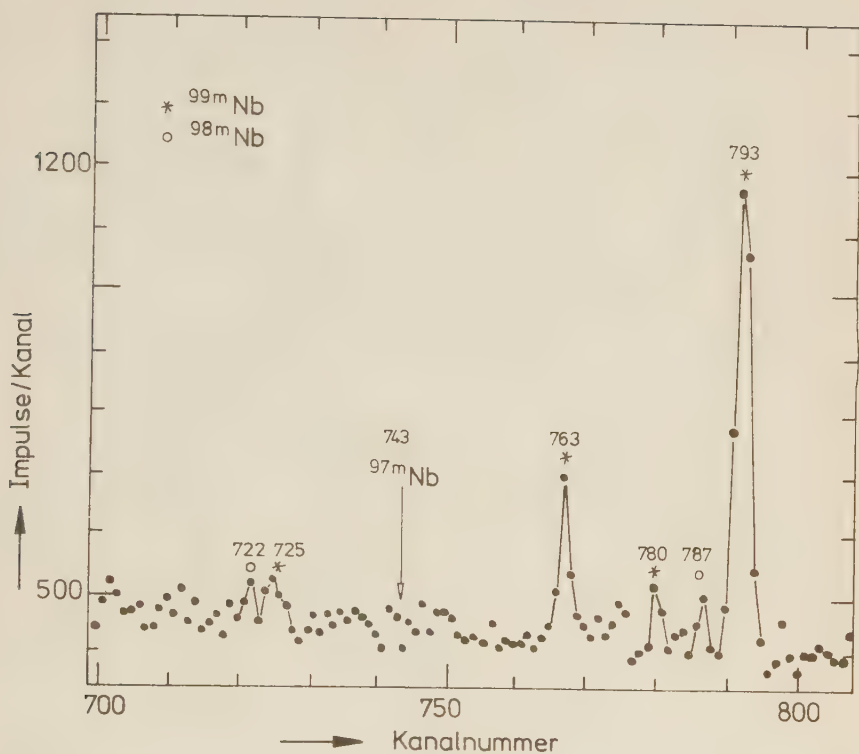


Abb. 22: Spektrum der Nb-Fraktion:

Ausschnitt: 700 - 800 keV

Bedingungen: Aufgenommen 1-5 min ab

Bestrahlungsende

Detektor D

Exp. Nr.	Det.	Verzög. zeit Δt /s/	Relative Teilchenzahl für:			
			97mNb a)	97Nb b)	98mNb c)	99mNb d)
1	D	30	≤ 316	$(1,488 \pm 0,238) \cdot 10^3$	$(5,511 \pm 0,540) \cdot 10^3$	$(1,736 \pm 0,056) \cdot 10^5$
2	E, abgesch.	1,9	≤ 60	-	$(8,05 \pm 1,13) \cdot 10^3$	$(1,226 \pm 0,097)^e) \cdot 10^5$

- a) Ausgewertet: 743 keV
b) Ausgewertet: 658 keV, Fehler rel. 16%
c) Ausgewertet: 722 und 787 keV
d) Ausgewertet: 98, 138, 253, 351, 525, 534, 631, 793 keV
e) Ausgewertet: 351, 525, 534, 631; wegen Abschirmung niederenergetischer γ 's

Tab. 20: Experimentelle Daten für die Auswertung von 97mNb

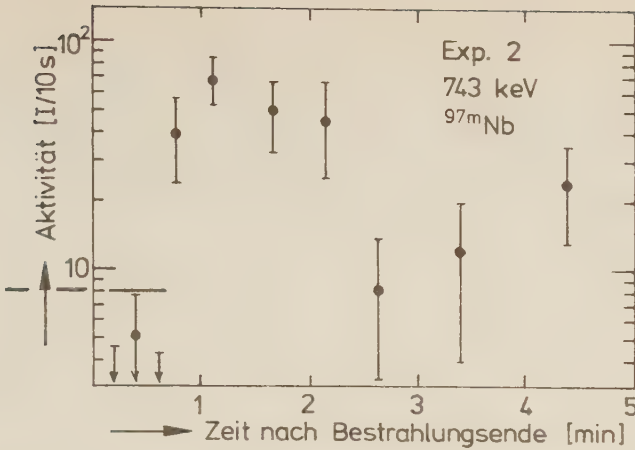


Abb. 23: Intensität der γ -Linie bei 743 keV, Experiment 2

Exp. Nr.	Verzög. zeit Δt /s/	Bezugsnuclid (Ausbeute)	Frakt. unabh. Ausbeute /%/ ^{97m}Nb
1	30	^{99m}Nb (36,5)	$\leq 0,068$
		^{98m}Nb (1,08)	$\leq 0,064$
		^{97g}Nb (0,24)	$\leq 0,051$
		<u>Mittel:</u>	$\leq 0,061 \rightarrow \leq 0,03^{\text{b)}}$
2	1,9	^{99m}Nb (20,1) ^{c)}	$\leq 0,01$
		^{98m}Nb (1,08)	$\leq 0,008$
		<u>Mittel:</u>	$\leq 0,009$

a) für $\Delta t = 30$ s

b) korrigiert für Nachbildung aus ^{97}Zr während Δt

c) berechnete Y_{fc} (^{99m}Nb) für $\Delta t = 1,9$ s; s. Glch. 5.4

Tab. 21: Fraktional unabhängige Ausbeute von ^{97m}Nb aus verschiedenen Experimenten

Plastik eingesetzt. Diese sollte die starken niederenergetischen Anteile der γ -Strahlung von ^{99}Nb zurückdrängen, ohne aber den Bereich um 700 keV wesentlich zu beeinflussen. Die Energieabhängigkeit der Nachweiswahrscheinlichkeit für diesen Aufbau ist in Abb. 5 mit eingezeichnet.

Darüberhinaus wurde zur Nb-Abtrennung die automatische Apparatur eingesetzt mit einem Trennzeitpunkt bei 1,9 s und einem Meßbeginn 10 s nach Bestrahlungsende. Auch in diesem Experiment war die 743 keV-Linie nur sehr schwach und schlecht auswertbar, trotz Summation von 28 Einzelversuchen. Nach Abzug eines langlebigen Untergrunds resultierten die Werte in Abb. 23. Der Verlauf der Punkte deutet eine Nachbildung an, die auf eine leichte Kontamination hinzuweisen scheint. Als Grenzwert für die $^{97\text{m}}\text{Nb}$ -Aktivität wurde deshalb der Mittelwert der Zählraten der ersten drei Punkte angenommen und auf Bestrahlungsende zurückextrapoliert. Die daraus berechneten relativen Teilchenzahlen sowie die der Bezugsnuklide sind Tab. 20 zu entnehmen.

Mit Hilfe von Gleichung 5.3 wurden daraus fraktional unabhängige Ausbeuten berechnet, die, für die verschiedenen Bezugsnuklide getrennt, in Tab. 21 zusammengestellt sind. Als oberer Grenzwert für die $^{97\text{m}}\text{Nb}$ -Ausbeute wurde der Mittelwert der Ergebnisse von Experiment 2 angenommen:

$$Y_{fi}(^{97\text{m}}\text{Nb}) \leq 0,009\%,$$

während für $^{97\text{g}}\text{Nb}$ folgt (als Differenz zur ^{97}Nb -Gesamtausbeute):

$$Y_{fi}(^{97\text{g}}\text{Nb}) \geq 0,20\%.$$

5.3. Die Ausbeute des ^{96}Nb

Die Ausbeute des abgeschirmten Nuklids ^{96}Nb wurde von einer Reihe von Autoren bestimmt: Mit radiochemischen Methoden

fanden I. F. Croall /92/ $(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-2}\%$ und T. Kaiser et al. /86,87/ $(0,83 \pm 0,04) \cdot 10^{-2}\%$ für die fraktional unabhängige Ausbeute. G. Siegert et al. /26/ und H. Wollnik et al. /25/ fanden dagegen $(1,0 \pm 0,8)\%$ bzw. $(0,5 \pm 0,5)\%$. Die um etwa zwei Größenordnungen differierenden Resultate gaben Veranlassung, diesen Wert ebenfalls zu bestimmen.

^{96}Nb wurde im Unterschied zu den bisher beschriebenen Experimenten in einer 6 h-Bestrahlung bei einem Fluß an thermischen Neutronen von $7 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ erzeugt. Als Bezugsnuklid diente hier nun das aus dem Gleichgewicht mit ^{97}Zr ebenfalls abgetrennte ^{97g}Nb . Die chemische Isolierung dieser Nb-Isotope fand 17,5 h nach Bestrahlungsende statt. Den zeitlichen Abfall der wichtigsten γ -Linien der beiden Nuklide zeigt Abb. 24. Die Spektren wurden mit Detektor D aufgenommen.

Die Kurvenanalysen ergaben im einzelnen folgende Resultate:

$E_{\gamma} / \text{keV/}$	$I_0 / 15 \text{ min}$	$T_{1/2}$
^{97}Nb :		
658	198156	72,9 min
^{96}Nb :		
569	16,82	22,4 h
778	16,30	25,0 h

Die Literaturhalbwertszeiten (s. Tab. 17) werden - in Anbetracht der geringen Zählrate - recht gut reproduziert. Die Berechnung der gebildeten Teilchenzahlen für ^{96}Nb erfolgte nach Gleichung 5.1 mit den Konstanten aus Tab. 17, während für die Auswertung von $^{97}\text{Zr/Nb}$ eine Änderung angebracht werden mußte, weil hier das radioaktive Gleichgewicht zu berücksichtigen war. Im vorliegenden transien-

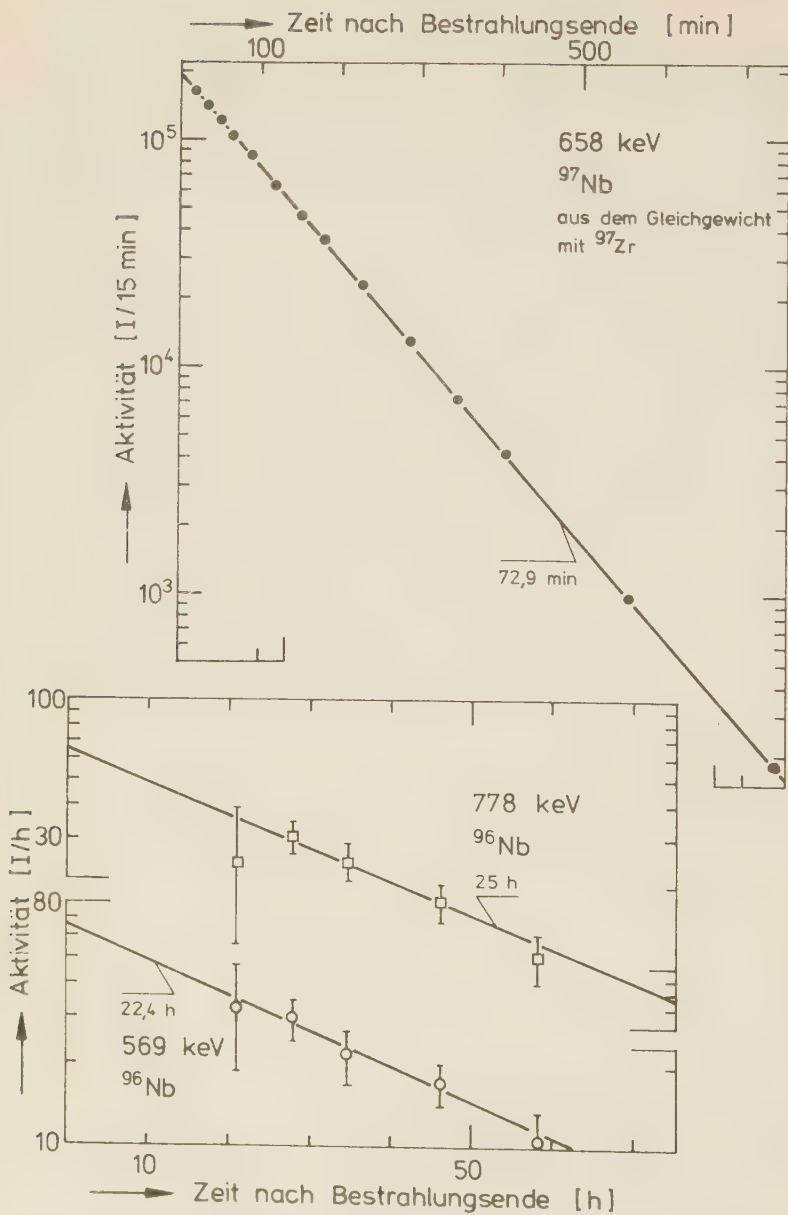


Abb. 24: Zerfallskurven der 658 keV-Linie des ^{97}Nb (aus dem Gleichgewicht mit ^{97}Zr) und der 569 und 778 keV-Linien von ^{96}Nb

ten Gleichgewicht gilt für die Aktivitäten von Mutter (^{97}Zr)- und Tochternuklid (^{97}Nb):

$$A_0(^{97}\text{Zr}) = \left[1 - \frac{T_{1/2} (^{97}\text{Nb})}{T_{1/2} (^{97}\text{Zr})} \right] A_0 (^{97}\text{Nb}) \quad (5.5)$$

Mit der Rückrechnung der so errechneten ^{97}Zr -Aktivität vom Zeitpunkt der chemischen Trennung (A_0) auf das Bestrahlungsende (A_{BE}) folgt dann als Auswertegleichung anstelle von 5.1:

$$N(^{97}\text{Zr}) = \frac{\left[1 - \frac{T_{1/2} (^{97}\text{Nb})}{T_{1/2} (^{97}\text{Zr})} \right] \cdot A_0 (^{97}\text{Nb}) \cdot \frac{1}{e^{-\lambda_{\text{Zr}} \Delta t}} \cdot T_{1/2} (^{97}\text{Zr})}{\ln 2 \cdot t_M \cdot I_f^{\text{abs}} \cdot \epsilon_f} \quad (5.6)$$

Die mit den Gleichungen 5.1 bzw. 5.6 erhaltenen Teilchenzahlen mußten dann noch für Bildung und Zerfall während der 6-stündigen Bestrahlungszeit t_B korrigiert werden:

$$N' = \frac{N_i}{(1 - e^{-\lambda_i t_B})} \quad (5.7)$$

Als Ergebnis wurden folgende relative Teilchenzahlen erhalten:

$$N' (^{97}\text{Zr}) = (1,166 \pm 0,003) \cdot 10^8,$$

$$N' (^{96}\text{Nb}) = (1,281 \pm 0,186) \cdot 10^4.$$

Mit den Gleichungen 5.2 und 5.3 resultieren dann die folgenden unabhängigen Ausbeuten:

$$Y_i(^{96}\text{Nb}) = (6,6 \pm 1,1) \cdot 10^{-4}\%$$

$$Y_{fi}(^{96}\text{Nb}) = (1,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-2}\%.$$

Wegen der sehr kleinen Ausbeute von ^{96}Nb und der Tatsache, daß dieser Kern abgeschirmt ist, mußte sichergestellt werden, daß während der Bestrahlung nicht durch einen anderen Kernprozeß ^{96}Nb und ^{97}Zr entstehen oder verschwinden. Reaktionen, die in Frage kämen, wären: $^{95}\text{Nb}(n,\gamma)^{96}\text{Nb}$, $\sigma < 7\text{b}$ /93/ und $^{96}\text{Zr}(n,\gamma)^{97}\text{Zr}$, $\sigma = 0,017\text{b}$ /93/. Deren zusätzliche Beiträge liegen unter den genannten Bestrahlungsbedingungen aber um einem Faktor $> 10^6$ bzw. $> 4 \cdot 10^9$ unter den hier gemessenen oder verwendeten Ausbeuten. Abgebaut werden könnte ^{96}Nb durch den Prozeß $^{96}\text{Nb}(n,\gamma)^{97}\text{Nb}$, für den jedoch kein Wirkungsquerschnitt publiziert ist. Experimente von T. Kaiser /86/ zeigen aber, daß der Beitrag von Sekundärreaktionen vernachlässigbar ist.

5.5. Diskussion

Alle gemessenen Nb-Ausbeuten der Massen 96-99 sind in Tab. 22 zusammengefaßt und können mit den Literaturdaten verglichen werden, die - wo erforderlich - nach Methoden getrennt sind.

Betrachtet man die ^{96}Nb - und ^{97}Nb -Ausbeuten, so ist gute Übereinstimmung mit früher publizierten radiochemischen Messungen festzustellen, während die Ergebnisse physikalischer Methoden zwei bzw. knapp eine Größenordnung darüber liegen.

Isotop/ Isomer	Spin d. Isom.	Fraktional unabhängige Ausbeute %/ diese Arbeit	
			andere Autoren
^{96}Nb		$(1,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-2}$	radioch. Meth.: $(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-2}$ /79,92/ $(0,83 \pm 0,04) \cdot 10^{-2}$ /87/ physikal. Meth.: $0,5 \pm 0,5$ /25/ $1,0 \pm 0,8$ /26/
^{97}Nb		$0,21 \pm 0,03$	radioch. Meth.: $0,17 \pm 0,08$ /79/ physikal. Meth.: $0,6 \pm 0,5$ /25/ $1,1 \pm 0,6$ /26/
$^{97\text{m}}\text{Nb}$	$1/2^-$	$\leq 0,009$	-
$^{97\text{g}}\text{Nb}$	$9/2^+$	$\geq 0,20$	-
^{98}Nb			$2,1 \pm 1,2$ /22/ $3,0 \pm 1,6$ /26/
$^{98\text{m}}\text{Nb}$	$4^-, 5^+$	$1,08 \pm 0,11$	$(1,1 \pm 0,2)$ /79/) ^{c)} $(0,81 \pm 0,04)$ /48,86/ ^{c)} $(0,6 \pm 0,3)$ /87/) ^{c)}
P_m a)		$\leq 0,0011$	$\leq 0,01$ /63/ $\leq 0,0044$ /85/
$^{99\text{m}}\text{Nb}$	$1/2^-$	$36,6 \pm 2,2$ ^{b)}	$36,4 \pm 4,5$ ^{b)} /diese Arbeit, s. Kap. 3.2/

a Verzweigungsverhältnis im ^{98}Zr ; Anteil, der in $^{98\text{m}}\text{Nb}$ zerfällt

b Fraktional kumulierte Ausbeute

c Nicht direkt vergleichbar wegen Unsicherheiten in P_m

Tab. 22: Ausbeuten der Nb-Isotope und -Isomere in den Isobarenketten 96-99

Die Ausbeute von ^{98m}Nb ist mit den übrigen Literaturdaten nicht ohne weiteres vergleichbar, weil in den Publikationen /79, 86, 87, 48/ nicht klar wird, ob eine Speisung aus dem Vorläufer ^{98}Zr berücksichtigt wurde oder nicht. Nimmt man aber an, daß dies nicht der Fall war, so ist gute Übereinstimmung mit D. E. Troutner /81, 79/ festzustellen, während die übrigen Werte etwas tiefer liegen.

Die zweite, in der Methode unabhängige Messung der Ausbeute von ^{99m}Nb zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit der ersten, so daß beide Messungen gemittelt werden können, was in Tab. 10 im Vorgriff bereits geschehen ist.

Die primären Ausbeuten der Isomere von ^{97}Nb und ^{98}Nb waren bisher nicht bekannt. Es fällt auf, daß bei ^{97}Nb das Hochspinisomer stark bevorzugt ist, während bei ^{98}Nb - verglichen mit den Ergebnissen für die ^{98}Nb -Gesamtausbeute nach /22,26/ - eine ziemlich gleichmäßige Speisung beobachtet wird.

Der Grenzwert für den Zerfall von ^{98}Zr in ^{98m}Nb konnte wesentlich reduziert werden, entsprechend der Erwartung für einen β^- -Übergang, der von 0^+ in den 4^- oder 5^- -Grundzustand von ^{98m}Nb notwendig wäre.

6. Zusammenfassende Diskussion der Meßergebnisse

6.1. Vorbemerkungen und Vergleich mit den Ergebnissen physikalischer Methoden

Bevor auf eine Analyse der Ausbeuteergebnisse eingegangen werden soll, erscheint es notwendig, die Meß- und Auswertemethoden der physikalischen Experimente zu beleuchten, weil diese später in einigen Fällen als Vergleich herangezogen werden.

Der Massenseparator LOHENGRIN, installiert am Hochflußreaktor des ILL Grenoble, trennt die ungebremsten Spaltprodukte nach Masse, kinetischer Energie und Ionenladung /55/. Die Zuordnung zu einer bestimmten Kernladung Z innerhalb einer Isobarenkette konnte dann auf verschiedenen Wegen erfolgen:

Von G. Siegert, H. Wollnik et al. /24-26/ wurde der Energieverlust der Spaltprodukte mit Hilfe eines ΔE -Si-Sperrschichtdetektors gemessen, was die Zuordnung zu einem bestimmten Z erlaubt. Die daraus resultierende Impulshöhenverteilung wurde mit Gaußskurven ohne Ausläufer für jedes Z gefittet, aus deren Fläche nach Normierung fraktionale Ausbeuten erhalten wurden. Diese Werte wurden gewichtet gemittelt für alle gemessenen kinetischen Energien und alle Ionenladungen und sollten dann mit radiochemischen Resultaten vergleichbar sein.

H.-G. Clerc et al. /21-23/ dagegen benutzten zum Z -Nachweis die Messung der Restenergie durch eine Flugzeitmethode nach der Z -abhängigen Abbremsung der Kerne in einem Kohlenstoff-Folienpaket. Die Flugzeitspektren wurden analysiert durch Anfitten von Gaußskurven mit einem niederenergetischen "Tailing" für jedes Z . Als fraktional unabhängige Ausbeute wurden die Daten der wahrscheinlichsten kinetischen Energie

der Spaltprodukte angenommen.

Der Vergleich der Ergebnisse, die in den Tabellen 10, 13-16 und 22 gegenübergestellt sind, zeigt, daß die Übereinstimmung mit den Resultaten von H.-G. Clerc et al. meist etwas besser ausfällt als mit denen von G. Siegert, H. Wollnik et al. Dies ist insofern überraschend, als der Auswerteweg der letztgenannten Gruppe eigentlich eher mit radiochemischen Analysen zu vergleichen wäre, wo ja - experimentbedingt - zwischen Ionenladungen und kinetischen Energien nicht unterschieden werden kann, d. h. also zwangsläufig darüber integriert wird.

Systematische Unterschiede werden bei kleinen Ausbeuten in der Nähe der Stabilitätslinie deutlich: Dort weichen die Meßergebnisse von G. Siegert et al. /26/ um bis zu zwei Größenordnungen von den Resultaten dieser Arbeit ab. Dieser Befund wird durch eine Reihe anderer Messungen /86, 87, 92/ und im Vergleich mit der Ausbeutesammlung von A. C. Wahl et al. /94/ bestätigt. Ein ähnlicher systematischer Trend deutet sich auch bei den extrem neutronenreichen Spaltprodukten weit weg von der Stabilität an: Für ^{97}Rb und ^{98}Rb wurden Daten publiziert /57/, die um bis zu eine Größenordnung niedriger liegen als die entsprechenden Ergebnisse von G. Siegert, H. Wollnik et al. /24-26/.

Gründe für diese Diskrepanzen könnten in der Analyse der gemessenen Spektren /24-26/ liegen. Durch kleinere Abweichungen von einer gaussförmigen Impulshöhenverteilung für jedes Z könnten Spaltprodukte an den Flanken der Gausskurve überproportional herausgehoben werden. Das würde bedeuten, daß fraktionale Ausbeuten unter etwa 3% mit großer Vorsicht zu betrachten sind. Konsequenzen würden diese Befunde auch auf die Modelle und die Betrachtung von Ladungs- und Isotopenverteilung (s. Kap. 6.2 und 6.3) haben. Solche systematischen Diskrepanzen zeigen sich beim Vergleich mit den

Daten von H.-G. Clerc et al. /21-23/ nicht. Ausbeuten unter 3% werden hier allerdings wesentlich seltener angegeben. Probleme können aber auftreten bei der Wahl der wahrscheinlichsten kinetischen Energie für eine gegebene Masse A, vor allem unter Berücksichtigung des Energieverlustes und der Energieverschmierung der Spaltprodukte im Target /22/. Dennoch ist eine gute Übereinstimmung zwischen diesen physikalischen (bei wahrscheinlichster kinetischer Fragmentenergie) und radiochemischen Resultaten (integriert über alle Energien) festzuhalten.

Im allgemeinen läßt sich also sagen, daß eine gute Übereinstimmung bei hohen Ausbeuten festgestellt wurde, daß aber Probleme bei niederen Ausbeutewerten auftreten können.

Um die in dieser Arbeit gemessenen Spaltausbeuten um $A \approx 100$ in den größeren Zusammenhang aller Spaltprodukte zu stellen, wurde ein Datensatz zusammengestellt, der im wesentlichen Ergebnisse radiochemischer Messungen enthält und einige Resultate massenspektrometrischer Untersuchungen, die auf chemischen Trenneffekten wie Emanation oder Oberflächenionisation beruhen. Aus den obengenannten Gründen wurde auf die Verwendung der physikalischen Experimente am LOHENGRIN verzichtet. Ausbeutewerte unter $Y_{fi} = 1\%$ wurden - entgegen einer Überlegung von A. C. Wahl /97/ - verwendet. Der Datensatz setzt sich aus Resultaten für die Isotope folgender Elemente zusammen:

As /98/; Se /98/; Br /99/; Kr /100/; Rb /57, 101, 102/; Y, Zr, Nb, Mo /diese Arbeit/; Tc /68/; Sn /103/; Sb /103, 104, 105/; Te /103, 104/; J /10,99/; Xe /100, 106/; Cs /101, 102/; Ba, La Ce, Pr /107/. Alle Daten wurden nach den gleichen Formalismen behandelt, die im folgenden beschrieben werden sollen.

6.2. Ladungsverteilung

6.2.1 Analyse der Ladungsverteilungsfunktion

Das bisher allgemein gebräuchliche Konzept der Beschreibung der Ladungsverteilung in der niederenergetischen Kernspaltung wurde von A. C. Wahl et al. /79, 94/ eingeführt. Innerhalb einer Isobarenkette sollte die Bildungswahrscheinlichkeit $P(Z, A)$ der einzelnen Elemente durch eine Gauss-Funktion beschrieben werden können, die charakterisiert ist durch ihre mittlere Lage Z_p (wahrscheinlichste Kernladung) und einen Parameter für ihre Breite σ :

$$P(Z, A) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma^2} e^{-\frac{[Z - Z_p(A)]^2}{2\sigma^2}}. \quad (6.1)$$

Zur Ermittlung von fraktional unabhängigen Ausbeuten für ein gegebenes Nuklid Z, A muß die Gleichung (6.1) in den Grenzen $Z - 1/2$ bis $Z + 1/2$ integriert werden:

$$\begin{aligned} Y_{fi}(Z, A) &= \int_{Z-1/2}^{Z+1/2} P(Z, A) dZ = \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma^2} \int_{Z-1/2}^{Z+1/2} e^{-\frac{[Z - Z_p(A)]^2}{2\sigma^2}} dZ, \end{aligned} \quad (6.2)$$

während für die fraktional kumulierten Ausbeuten folgt:

$$\begin{aligned} Y_{fc}(Z, A) &= \int_{-\infty}^{Z+1/2} P(Z, A) dZ = \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma^2} \int_{-\infty}^{Z+1/2} e^{-\frac{[Z - Z_p(A)]^2}{2\sigma^2}} dZ. \end{aligned} \quad (6.3)$$

Dieser gaussförmigen Verteilung der Spaltprodukte innerhalb einer Isobarenkette überlagern sich noch Effekte, die auf die Protonen- und Neutronenpaarung zurückzuführen sind. Dadurch liegen die Ausbeuten von Kernen mit geradem Z etwas über, die Kerne mit ungeradem Z eher etwas unter der mittleren Ladungsverteilungskurve. Dieses Oszillieren verschlechtert jedoch die Fittergebnisse; es kann aber a priori nur durch genaue Kenntnis des Wertes für den Protonenpaarungseffekt korrigiert werden, während der Neutronenpaarungseffekt meist innerhalb der Fehler der einzelnen Ausbeuten liegt. Auf die Methoden zur Bestimmung dieser Paarungseffekte wird in Kap. 6.3.4 eingegangen werden.

Für die Analyse der Ladungsverteilung wurde nun sowohl das klassische Verfahren von A. C. Wahl et al. /79/ benutzt, als auch ein neueres Fitverfahren /39/.

Nach /79/ wurden in einem Wahrscheinlichkeitsmaßstab die fraktional kumulierten Ausbeuten als Funktion der Ordnungszahl aufgetragen. Ist die Annahme einer Gaussfunktion gerechtfertigt, so sollte bei einer genügenden Zahl von Daten eine Gerade für jede Masse resultieren. Aus dem Schnittpunkt mit der 50%-Linie und der Steigung lassen sich dann die Parameter Z_p und σ_z bestimmen /79/. Alle in dieser Arbeit gemessenen Ausbeuten sowie einige weitere Daten /57, 68/ sind in Abb. 25 diesem Verfahren unterzogen worden.

Die resultierenden Geraden zeigen, daß die Hypothese der Gaussfunktion in erster Näherung daraus gerechtfertigt scheint. Einige Ansatzpunkte der Kritik sind bei diesem Verfahren allerdings herauszuheben: Durch die Kumulierung werden Fehler an einem Punkt niedrigen Z 's innerhalb einer Isobarenkette auf alle weiteren Punkte übertragen und beeinflussen so den gesamten Kurvenverlauf. Paarungseffekte, vor allem für Protonen, werden nur bei Kernen niedrigen Z 's deutlich, während sie durch die Aufsummierung im weiteren Verlauf immer mehr verschmiert werden. Aus Gründen der

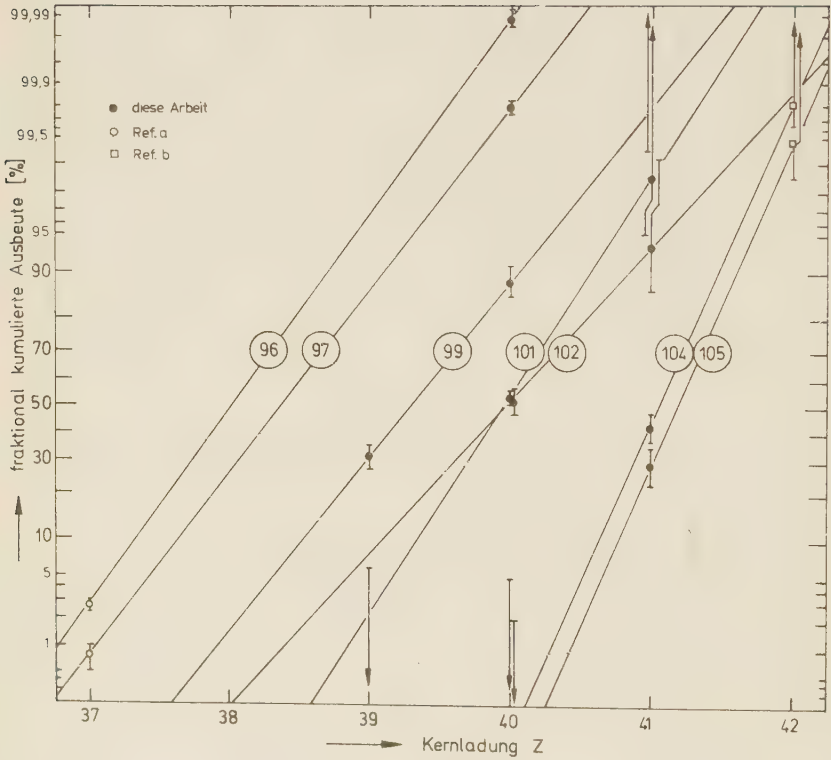


Abb. 25: Ladungsverteilung der Massen $A = 96-105$ in der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$, aufgetragen im Wahrscheinlichkeitsmaßstab /79/.

Ref. a: /57, 58/; Ref. b: /68/

Vergleichbarkeit wurde diese Auftragung dennoch beibehalten. Die daraus entnommenen Parameter sind zusammen mit den Ergebnissen anderer Analysemethoden in Tab. 23 dargestellt.

Daneben wurde mit Hilfe des Programms 'FITGAU' /39/ an die fraktional unabhängigen Ausbeuten eine Gaussfunktion angefitet. Als Beispiel für die Ergebnisse ist in Abb. 26 die Isobarenkette 99 mit experimentellen Daten und Fitkurve dargestellt. Auch hier erscheint das Argument der Gauss-Verteilung über einen weiten Bereich gut erfüllt. Dadurch, daß für den Fit meist nur ein oder zwei Daten über der Mindestparameterzahl zur Verfügung stehen, stimmen die Endresultate beider Auswertemethoden gut überein und sind deshalb in Tab. 23 nicht mehr differenziert.

Ein anderes Konzept zur Beschreibung der Ladungsverteilung wurde von H.-G. Clerc et al. /22/ eingeführt. Man geht hier nicht zwangsläufig von einer gaussförmigen Kurve aus, sondern benutzt zur Charakterisierung der Verteilung deren Momente:

$$1. \text{ Moment: } \bar{Z}_p = \sum_i Z_i \cdot \frac{y_i(Z_i)}{100} \quad (6.5)$$

$$2. \text{ Moment: } \sigma_z' = \sqrt{\sum_i (Z_i - \bar{Z}_p)^2 \cdot \frac{y_i(Z_i)}{100}} \quad (6.6)$$

Die Varianz σ_z' ist mit der Breite σ_z nach A. C. Wahl /79, 97/ nicht direkt vergleichbar, da bei der Momentenmethode eine kontinuierliche Verteilung angenommen wird. Dieser Tatsache würde durch die Sheppard-Korrektur /97/ Rechnung getragen:

$$\sigma_z^2 \approx \sigma_z'^2 - \frac{1}{12}$$

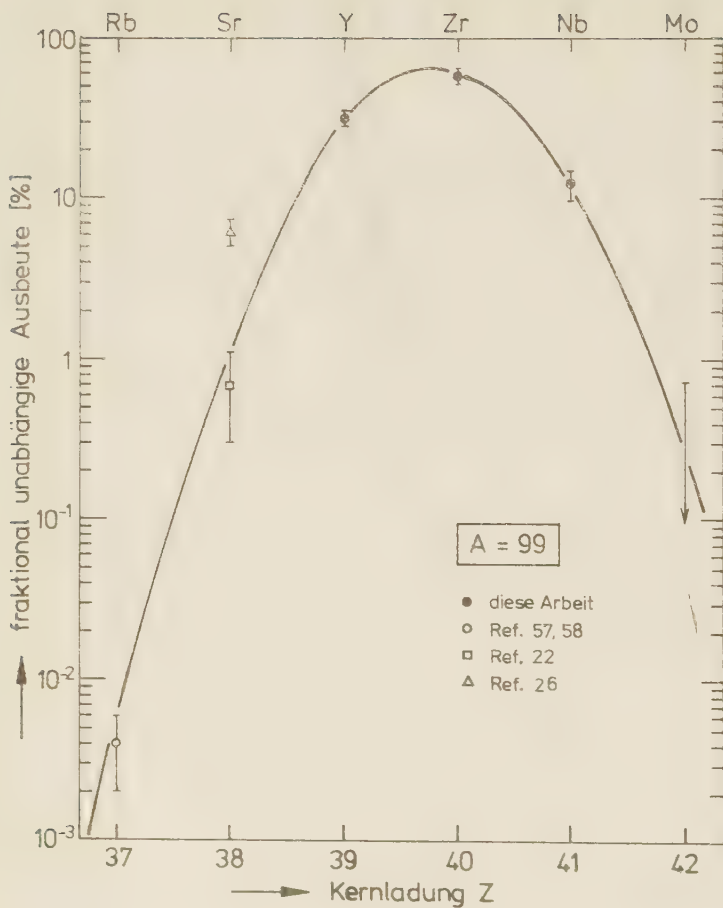


Abb. 26: Ladungsverteilung der Isobarenkette 99
 durchgezogene Kurve: Fitergebnis nach
 'FITGAU' /39/

Methode ^{a)} :	Diese Arbeit			H.-G. Clerc et al. /22/			G. Siegart, H. Wollnik et al. /25, 26/	
	Gauss		Momente	Momente			Momente	
A	Z_p	σ_z	Z_p	σ_z'	Z_p	σ_z'	Z_p	σ_z' b)
96	38,53 $\pm$ 0,05	0,53 $\pm$ 0,05	-	-	38,53 $\pm$ 0,07	0,61 $\pm$ 0,03	38,37	0,68
97	38,87 $\pm$ 0,06	0,57 $\pm$ 0,05	-	-	38,86 $\pm$ 0,10	0,62 $\pm$ 0,02	38,75	0,73
98	-	-	-	-	39,36 $\pm$ 0,10	0,73 $\pm$ 0,02	39,33	0,80
99	39,80 $\pm$ 0,05	0,59 $\pm$ 0,04	39,79	0,65	39,76 $\pm$ 0,09	0,61 $\pm$ 0,02	39,61	0,73
100	-	-	-	-	40,10 $\pm$ 0,07	0,43 $\pm$ 0,03	39,98	0,47
101	40,46 $\pm$ 0,03	0,46 $\pm$ 0,07	40,46	0,56	40,40 $\pm$ 0,08	0,58 $\pm$ 0,04	40,26	0,68
102	40,46 $\pm$ 0,09	0,68 $\pm$ 0,12	40,54	0,62	40,59 $\pm$ 0,08	0,66 $\pm$ 0,02	40,40	0,67
103	-	-	-	-	41,04 $\pm$ 0,10	0,68 $\pm$ 0,02	41,08	0,76
104	41,55 $\pm$ 0,07	0,34 $\pm$ 0,1	41,61	0,50	41,56 $\pm$ 0,10	0,66 $\pm$ 0,04	-	-
105	41,68 $\pm$ 0,06	0,33 $\pm$ 0,06	41,52	0,50	41,84 $\pm$ 0,07	0,45 $\pm$ 0,04	-	-

a) Methoden: Gauss: Anfiten einer Gaussfunktion, bzw. kumulierte Auftragung im Wahrscheinlichkeitsmaßstab

Momente:Nach Glch.: 6.5 (Z_p) und 6.6 (σ_z')

b) entnommen aus Fig. 2 von Ref. /26/ bzw. Fig. 4 b von Ref. /25/

Tab. 23: Parameter der Ladungsverteilung in den Isobarenketten 90-105 der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$

Das Glied $1/12$ stellt gerade die Varianz einer Rechtecksverteilung dar, die als Extremfall des hier dargestellten Formalismus anzusehen wäre. Die Anwendung der Sheppard-Korrektur in statistischen Ansätzen ist allerdings umstritten /95, 96/: Sie neigt offenbar dazu, den Einfluß, den der Übergang auf eine Stufenfunktion bewirkt, zu überschätzen und damit möglicherweise einen alten Fehler durch einen neuen zu ersetzen. Deshalb wird sie von einigen Autoren nicht verwandt /95/.

Der Vergleich beider Methoden (Tab.23) zeigt eine recht gute Übereinstimmung, was prinzipiell für die Annahme einer Gaussfunktion spricht. Falls nämlich diese Hypothese stimmt, so fallen die Z_p -Werte, ausgerechnet nach beiden Methoden, zusammen. Probleme bei der Auswertung nach der Momentenmethode ergeben sich allerdings bei der Verwendung von Grenzwerten für unabhängige Ausbeuten: Dies erklärt die unterschiedlichen Resultate für $A = 10^4$ und 10^5 bei der Analyse der Daten dieser Arbeit mit beiden Techniken (Tab. 23).

Die Übereinstimmung mit den Ergebnissen physikalischer Experimente /22, 25, 26/ ist befriedigend.

6.2.2 UCD-Modell

Die experimentellen Z_p -Werte können nun mit den Vorhersagen verschiedener Modelle verglichen werden. Das heute allgemein übliche Konzept geht ebenfalls auf A. C. Wahl et al. /79/ zurück. Der Ausgangspunkt ist hier die Annahme, daß die Kernmaterie schwer polarisierbar sei und deshalb die Fragmentkerne die Ladungsdichte, also das Protonen-zur-Masse-Verhältnis, des spaltenden Kerns widerspiegeln

sollten, d. h.:

$$\left(\frac{Z_f}{A_f}\right) = \left(\frac{Z}{A}\right)_{\text{Fragm.}}$$

Das führt zu:

$$Z_{\text{UCD}} = (A + v(A)) \frac{Z_f}{A_f} = A' \cdot \frac{Z_f}{A_f} \quad (6.7)$$

wobei die Produktkernmasse A für die Abdampfung der prompten Neutronen $v(A)$ korrigiert werden muß. 'UCD' steht für 'Unchanged Charge Density'. Die Differenz zwischen experimentellem Z_p -Wert und dem Bezugspunkt Z_{UCD} wird als Ladungsverschiebung ΔZ bezeichnet:

$$\Delta Z = (Z_p - Z_{\text{UCD}})_{\text{leichtes Fragm.}} = (Z_{\text{UCD}} - Z_p)_{\text{schweres Fragm.}} \quad (6.8)$$

Die ΔZ -Werte komplementärer Fragmente sollten sich nur durch das Vorzeichen unterscheiden, sollten also dem Betrage nach gleich sein. Die Ladungsverschiebungen sind als Funktion der Fragmentmasse in Tab. 24 zusammengestellt. Mit aufgenommen sind entsprechende Ergebnisse physikalischer Experimente. Dem Trend, weniger dem Betrage nach, ist hier ebenfalls vernünftige Übereinstimmung festzuhalten.

Abb. 27 zeigt die Darstellung von ΔZ und σ_z als Funktion von $A' = A + v(A)$. Im wesentlichen folgen die Daten einem oszillierenden Verlauf, der ursprünglich von G. Siegert et al. /24, 108/ und H.-G. Clerc et al. /22/ vorgeschlagen worden war und später von A. C. Wahl /97/ in einer semiempirischen Beschreibung verwendet wurde. Dieser Verlauf ist

A	A+ ν (A) ^{a)}	Z _{UCD} ^{b)}	ΔZ		
			Diese Arbeit	H.-G. Clerc et al. /22/	G. Siegert, H. Wollnik et al./25,26/
96	97,54	38,024	0,51 $\pm$ 0,05	0,51 $\pm$ 0,07	0,35
97	98,55	38,418	0,45 $\pm$ 0,06	0,44 $\pm$ 0,10	0,33
98	99,55	38,808	-	0,55 $\pm$ 0,10	0,52
99	100,54	39,194	0,61 $\pm$ 0,05	0,57 $\pm$ 0,09	0,42
100	101,48	39,560	-	0,54 $\pm$ 0,07	0,42
101	102,43	39,930	0,53 $\pm$ 0,03	0,47 $\pm$ 0,08	0,33
102	103,40	40,308	0,15 $\pm$ 0,09	0,28 $\pm$ 0,08	0,09
103	104,36	40,683	-	0,36 $\pm$ 0,10	0,40
104	105,32	41,057	0,49 $\pm$ 0,07	0,50 $\pm$ 0,10	-
105	106,42	41,536	0,14 $\pm$ 0,06	0,35 $\pm$ 0,07	-

a) ν (A) nach Ref. /94/

b) nach Glch. 6.7

Tab. 24: Ladungsverschiebung ΔZ für A = 96-105 in der
Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$

ebenfalls eingetragen (gestrichelte Linie). Der Grund für diese Oszillationen ist der Protonenpaarungseffekt: Die Tendenz, ein möglichst gerades Z_p zu erreichen, führt zu einer mehr oder weniger starken Entfernung oder Annäherung an Z_{UCD} . Andererseits nimmt die Breite σ_Z der Ladungsverteilung ab, wenn ein gerades Z_p erreicht werden kann, und zu, wenn ein ungerades Z_p erhalten bleiben muß. Als Beispiel für dieses Verhalten ist für die komplementären Fragmente mit $Z = 56$ bzw. 36 der Verlauf eingezeichnet, der erwartet würde, wenn ein Z_p von 56 bzw. 36 erhalten bliebe. Die Auswirkung auf σ_Z zeigt sich in einem ausgeprägten Minimum an der Stelle, wo gerade diese Ausbeutenverteilung am besten erfüllt ist, d. h. da, wo experimentelle ΔZ -Werte und Modell sich überschneiden.

Bemerkenswert erscheint in diesem Zusammenhang die Tatsache, daß in den Abbildungen der physikalischen Experimente /22, 26/ stets Maxima und Minima der ΔZ - und σ_Z -Funktion zusammenfallen, während im semiempirischen Modell von A. C. Wahl /97/ die Extrema in σ_Z mit den Wendepunkten ΔZ korrespondieren, obwohl in diesem Modell auch die physikalischen Ergebnisse verwendet wurden.

Die Abweichungen von der ΔZ -Modellkurve und der Daten für leichte und schwere Fragmente untereinander im Massenbereich $A_e < 104$ ($A_s > 130$) sind zu einem Gutteil auf die Unsicherheit in $v(A)$ zurückzuführen: A. C. Wahl et al./94/ schätzen einen Fehler von etwa $0,3$ Masseneinheiten für den Wert der prompten Neutronenemission ab. Der Fehler, der den ΔZ -Werten eigentlich durch die Verwendung dieser Werte noch zusätzlich anhaftet, ist in Abb. 27 oben größenordnungsmäßig für $A \approx 95$ eingezeichnet. In den Randgebieten ($A > 104$ bzw. $A < 130$ und $A < 85$ bzw. $A > 150$) ist der Fehler noch wesentlich größer /94/.

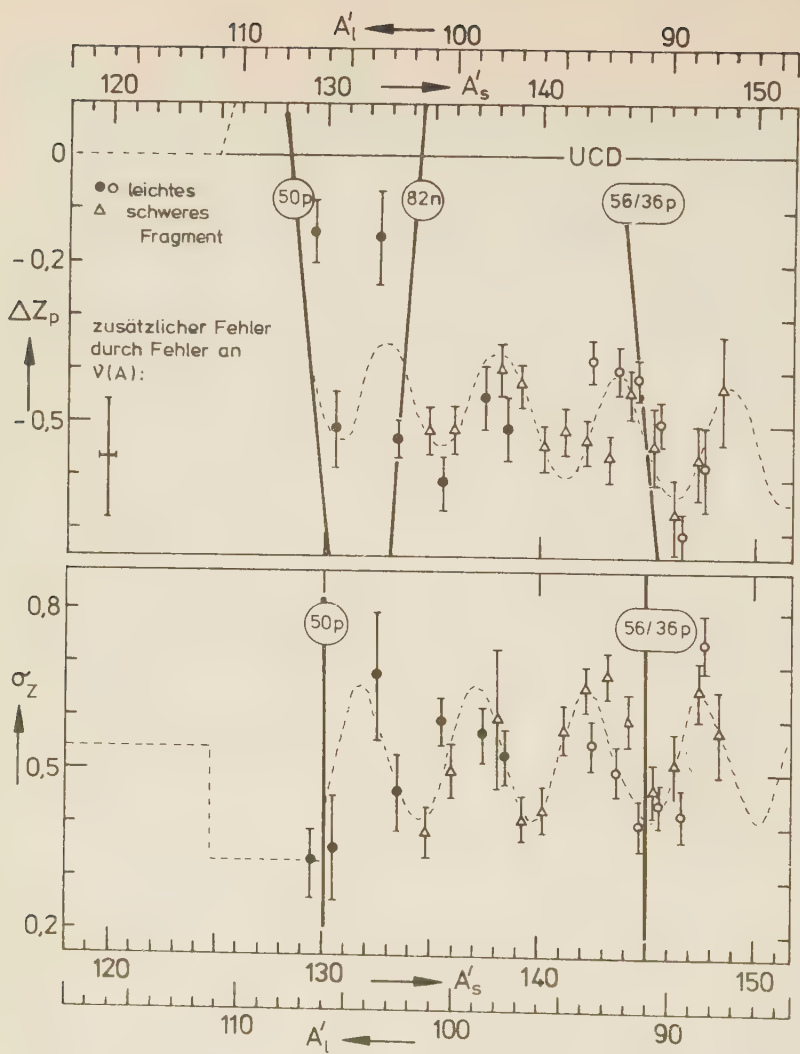


Abb. 27: Parameter der Ladungsverteilung ΔZ_p (oben) und σ_z (unten) als Funktion der primären Fragmentmasse

Unterbrochene Linien: nach A. C. Wahl /97/

Durchgezogene Linien: Wirkungssphäre abgeschlossener Schalen

Volle Punkte: Diese Arbeit

Offene Punkte: Datensatz nach /10,57,68,98-107/

Fehlerabschätzung durch $\psi(A)$ nach /94/

Größere Abweichungen von diesem oszillierenden Verlauf werden bei Fragmentmassen > 101 bzw. < 135 deutlich: der erste stark abweichende ΔZ -Wert gehört zur Produktmasse 102 und ist die Folge einer überproportionalen primären Bildung von Zr, dessen fraktional unabhängige Ausbeute ab Masse 99 praktisch unverändert bleibt: ^{99}Zr : 56,9%; ^{101}Zr : 53,4%, ^{102}Zr : 52,4%; (diese Arbeit/, s. Tab. 10, 13, 14). Auf ein anomales Verhalten der Spaltprodukte der Isobare 102 wiesen bereits W. Reisdorf et al. /109/ und H. Wohlfarth et al. /110/ hin. Als Interpretationsvorschlag für eine extrem hohe Massenausbeute von $A = 102$ bei niedrigen Fragment-Anregungsenergien wurde das Erreichen einer abgeschlossenen 82-Neutronenschale im schweren Fragment angegeben. Der ΔZ -Wert sollte dann aber in der Nähe einer Linie liegen, die bei Erhaltung der 82-Neutronenschale berechnet werden kann. Dieser Verlauf ist in Abb. 27 ebenfalls eingetragen, ohne daß aber eine ungefähre Übereinstimmung festzustellen wäre, was gegen diese Interpretation allein spricht.

Eine andere Erklärung geht auf theoretische Betrachtungen von B. D. Wilkins et al. /7/ zurück. In der Gegend eines Massensplits um 102/134 wird das Zusammentreffen eines sehr gering deformierten schweren Fragments und eines stark, aber offenbar stabil deformierten leichten Fragments postuliert. Der Effekt Schalenabschluß - als Grund für die geringe Deformation des schweren Fragments - und der Effekt leichte Deformierbarkeit des leichten Teilchens scheinen sich hier also zu überlagern.

Die Ladungsverschiebung der Isobare 105 hat ebenfalls einen sehr kleinen Wert. Dieses Verhalten ist durch die Möglichkeit des komplementären Fragments erklärbar, einen Z_p -Wert um etwa 50 zu erhalten, was wieder einer abgeschlossenen Protonenschale entspricht. Die schweren Fragmente dieses

Gebietes, die ausführlich von H. O. Denschlag et al. /10, 103/ untersucht wurden, bestätigen diesen Trend. Der Einfluß dieser 50-Protonenschale geht weit über den bereits diskutierten Protonenpaarungseffekt hinaus, was sich unter anderem darin äußert, daß das Vorzeichen von ΔZ bei $A > 107$ umzukehren beginnt /22, 97/. Es besteht also keine große Neigung, eine Konfiguration mit 50 Protonen aufzubrechen.

Die Übereinstimmung der gemessenen Parameter der Ladungsverteilung mit dem Vorschlag von A. C. Wahl /97/ ist im Fall von σ_z sehr gut, während es bei $\Delta Z = f(A)$ einige Abweichungen gibt. Diese Diskrepanz könnte mit der Annahme eines konstanten gerade-ungerade-Effekts von $(26 \pm 2)\%$ /97/ in diesem Modell zusammenhängen. Auf dieses Problem wird in Kap. 6.3.4 besonders eingegangen werden.

Von Seiten der Theorie wird der Verlauf der ΔZ -Funktion recht gut durch ein Modell von B. D. Wilkins et al. /8/ beschrieben. Der Ansatz dazu basiert auf der Minimierung der potentiellen Energie, die aus dem Tröpfchenmodell berechnet wurde. Korrekturen für Schalen- und Paarungseffekte bei deformierten Fragmenten nach dem Formalismus von V. M. Strutinsky /111/ wurden angebracht. Die Rechnungen geben die Oszillation von ΔZ durch den Paarungseffekt wie auch den massiven Einfluß der 50-Protonenschale sehr gut wieder. Diese gute Übereinstimmung wird durch eine Verfeinerung des Modells von den gleichen Autoren /7/ erstaunlicherweise wieder aufgehoben. Vor allem der 50-p Schaleneffekt wird nun wesentlich unterschätzt.

6.3. Isotopenverteilung

6.3.1 Beschreibung und Ergebnisse

Neben der Ladungsverteilung wird zur Beschreibung primärer Ausbeuten seit einiger Zeit auch die Isotopenverteilung herangezogen. Der Formalismus der Isotopenverteilungssystematik /97/ ist analog dem der Ladungsverteilung, ebenso die Art der mathematischen Auswertung (Kap. 6.2.1): Aufgetragen gegen die primäre Fragmentmasse A' sollten die unabhängigen Ausbeuten aller Isotope eines Elementes wieder einer Gaussverteilung gehorchen, die durch die Breite σ_A und das Maximum A_p' charakterisiert ist. Eine Massenverschiebung $\Delta A_p'$ wird definiert, die in Analogie zu den Gleichungen 6.7 und 6.8 wie folgt aussieht:

$$\begin{aligned} \Delta A_p' &= \left[A_p' - \left(Z \cdot \frac{A_f}{Z_f} \right) \right]_{\text{leichtes Fragment}} = \\ &= \left[\left(Z \cdot \frac{A_f}{Z_f} \right) - A_p' \right]_{\text{schweres Fragment}} \end{aligned} \quad (6.9)$$

In Abb. 28 sind zunächst die Isotopenverteilungen für die in dieser Arbeit untersuchten Elemente in Abhängigkeit von A' dargestellt. Ebenfalls eingetragen sind die unabhängigen Ausbeuten der jeweils komplementären Kerne, die dem in Kap. 6.1. beschriebenen Datensatz entnommen sind. Fraktionale Daten wurden mit Hilfe der Massenausbeuten nach J. G. Cuninghame /59/ in absolute Ausbeuten umgerechnet. Es wird deutlich, daß die Hypothese der Gaussfunktion bis zu sehr niedrigen Ausbeuten, wie im Falle von ^{96}Nb und ^{97}Nb , sehr gut erfüllt ist. Bei der über einen weiten Bereich sehr gut belegten Kurve für Rb /57/ konnte dieselbe Feststellung getroffen werden. Komplementäre Frag-

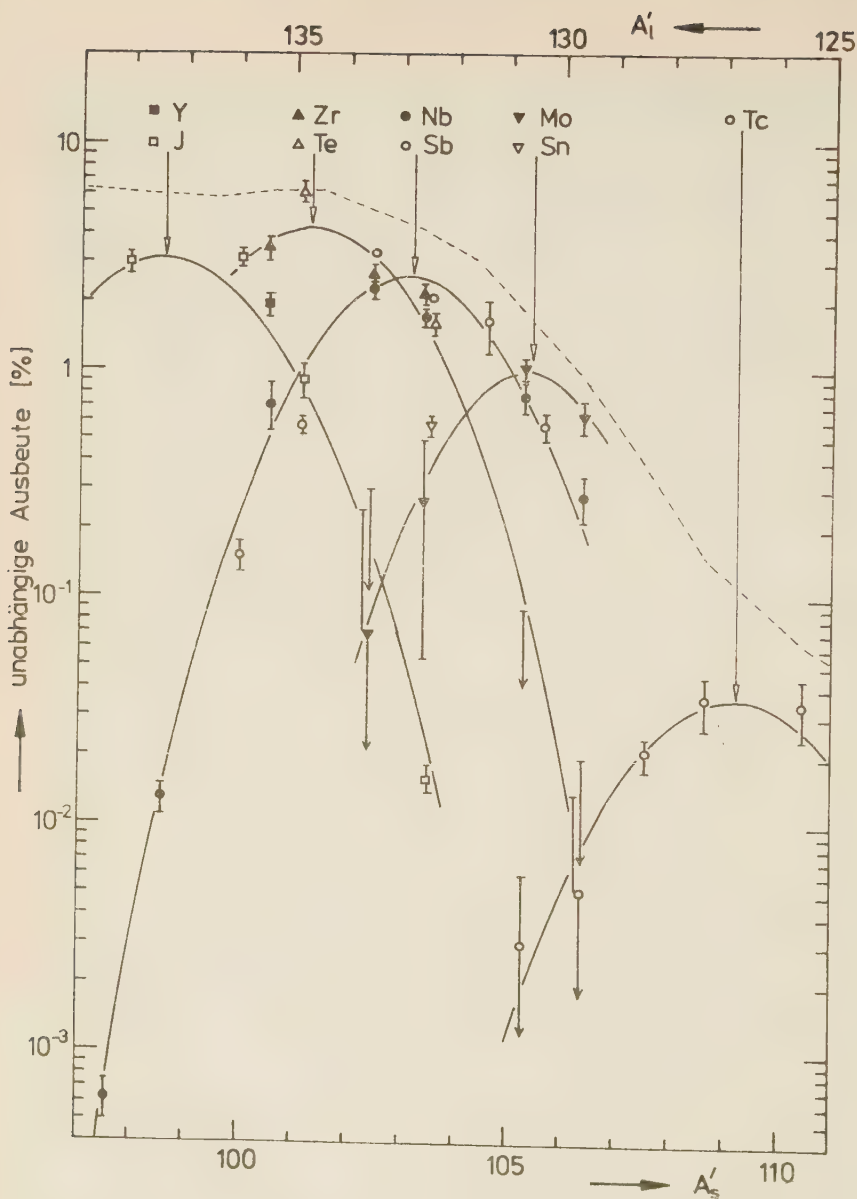


Abb. 28: Isotopenverteilungen der Elemente Y-Tc und deren komplementären Fragmenten Sn-J.

Volle Punkte: Diese Arbeit

Offene Punkte: Aus Datensatz nach /10,68,99,103-105/

Gestrichelte Kurve: Massenverteilung /59/

mente folgen dem Verlauf, der durch die leichten Elemente vorgegeben ist, ebenfalls recht gut. Abweichungen sind meist auf die Unsicherheit in der Zahl der abgedampften Neutronen zurückzuführen.

Die Parameter der Isotopenverteilung, $\Delta A_p'$ und σ_z , sind als Funktion der Kernladung in Tab. 25 und Abb. 29 dargestellt. Die $\Delta A_p'$ -Werte liegen im wesentlichen auf einer Geraden. Nur im Bereich um $Z = 40$ scheint sich eine Annäherung an den Verlauf einer Stufenfunktion anzudeuten, die von A. C. Wahl /97/ vorgeschlagen wurde und punktiert in Abb. 29 eingetragen wurde. Eine deutliche Diskrepanz zeigt sich bei $\Delta A_p'$ von Tc: Ein Wert von 0 wurde vorhergesagt /97/, das Meßergebnis liegt bei ca. 1. Die Breite $\sigma_{A'}$ dieser Verteilung streut um einen konstanten Wert von $1,49 \pm 0,01$ (gewichtetes Mittel).

Eine gute Kontrolle für die Auswertemethode stellt die Betrachtung der A_p' -Werte komplementärer Fragmente dar: Die Summe beider Daten sollte sich von 236, der Masse des spaltenden Urankerns, nicht wesentlich unterscheiden. Das ist durchweg sehr gut erfüllt; die Abweichung ist stets kleiner als die Summe der Fehlerquadrate.

Eine andere Möglichkeit der Analyse der Isotopenverteilung besteht in der Auftragung der fraktional unabhängigen Ausbeuten in Abhängigkeit von der Fragmentmasse A' , anstelle der unabhängigen, d. h. absoluten Ausbeuten. Auch hier sollten Gaußskurven erwartet werden, allerdings unter der Voraussetzung, daß auch die Massenverteilung näherungsweise als gaußförmig anzusehen ist. Daß man davon ausgehen kann, zeigen empirische Beschreibungen der Massenausbeuten durch A. R. deL Musgrove et al. /112/. Die Vorteile dieser Methode liegen in der Tatsache, daß sehr viele Ausbeutedaten experimentbedingt fraktional gemessen wurden und nun für diese Auswertung direkt eingesetzt werden können. Neben dieser mehr mathe-

matischen Voraussetzung stellt sich nun die Frage, welche Konsequenzen die Beschreibbarkeit der absoluten oder fraktionalen Daten durch Gaußskurven hat. Sind die absoluten Ausbeuten durch eine Gaußverteilung zu beschreiben, so sollte man annehmen, daß die Massenverteilung an die Ladungsverteilung gekoppelt ist. Wenn die fraktionalen Ausbeuten einer Gaußfunktion gehorchen, so wäre die Verteilung der Nukleonen von der Massenverteilung entkoppelt. Eine Entscheidung, welche Bedingung besser erfüllt ist, kann anhand der hier verwendeten Daten kaum getroffen werden.

Durch die hier vorgenommene Faltung von absoluten Isotopenverteilungen mit der Massenverteilung verschiebt sich der A_p' -Wert, während die Breite σ_A' wenig verändert wird. In analoger Weise wie oben beschrieben ist in Abb. 30 $\Delta A_p'$ und σ_A' für diese Auswertemethode als Funktion von Z dargestellt. Zur Vereinfachung wurden jeweils komplementäre Fragmente gemeinsam analysiert. Der Verlauf von $\Delta A_p'$ läßt sich überraschenderweise als Parallele zur Z -Achse betrachten, hat also einen konstanten Wert von $1,26 \pm 0,02$. Eine Ausnahme macht das Tc, was darauf zurückgeführt werden könnte, daß die Tendenz, die 50-Protonenschale aufzubrechen, sehr gering ist und daß die Notwendigkeit, diesen Schritt zu tun, zu schwereren Massen des leichten Astes verschoben ist. Eine weitere Möglichkeit, diese Abweichung zu erklären, liegt in der Voraussetzung für diese Methode: Die Massenverteilung zeigt im Bereich $A > 100$ bzw. $A < 135$ Abweichungen von der Annahme einer Gaußverteilung, d. h. die eingangs gemachte Bedingung ist hier nicht mehr so sauber erfüllt.

Die Breite σ_A' streut um einen ebenfalls konstanten Wert von $1,58 \pm 0,02$, die Schwankungsbreite ist geringfügig reduziert gegenüber der Darstellung in Abb. 29.

Z	komplem. Fragm. Z*	Analyse unabhängiger (absoluter) Daten			Analyse fraktionell abhängiger Daten			unabhängig a)
		A_p'	σ_{A_p}'	$\Delta A_p'$	λ_f'	σ_{A_p}'	$\Delta A_p'$	
$^{39}_{39}\text{Y}$	$^{53}_{53}\text{J}$	$98,56 \pm 0,04^{\text{a)}$	$1,57 \pm 0,04^{\text{a)}$	$1,48 \pm 0,04$	$98,84 \pm 0,06$	$1,47 \pm 0,04$	$1,20 \pm 0,06$	
$^{40}_{40}\text{Zr}$	$^{52}_{52}\text{Te}$	$101,25 \pm 0,06$	$1,48 \pm 0,04$	$1,36 \pm 0,06$	$101,40 \pm 0,14$	$1,82 \pm 0,15$	$1,21 \pm 0,14$	
$^{41}_{41}\text{Nb}$	$^{51}_{51}\text{Sb}$	$103,07 \pm 0,04$	$1,36 \pm 0,02$	$2,10 \pm 0,04$	$104,17 \pm 0,09$	$1,64 \pm 0,03$	$1,00 \pm 0,09$	
$^{42}_{42}\text{Mo}$	$^{50}_{50}\text{Sn}$	$105,38 \pm 0,20$	$1,28 \pm 0,18$	$2,35 \pm 0,20$	$106,27 \pm 0,20$	$1,51 \pm 0,20$	$1,47 \pm 0,20$	

a) Analysiert jeweils zusammen mit Daten für das komplementäre Fragment, entnommen aus Datensatz, s. Kap. 6.1.

Tab. 25: Parameter der Isotopenverteilung der Elemente Y - Mo aus der Analyse unabhängiger bzw. fraktionell unabhängiger Ausbeuten

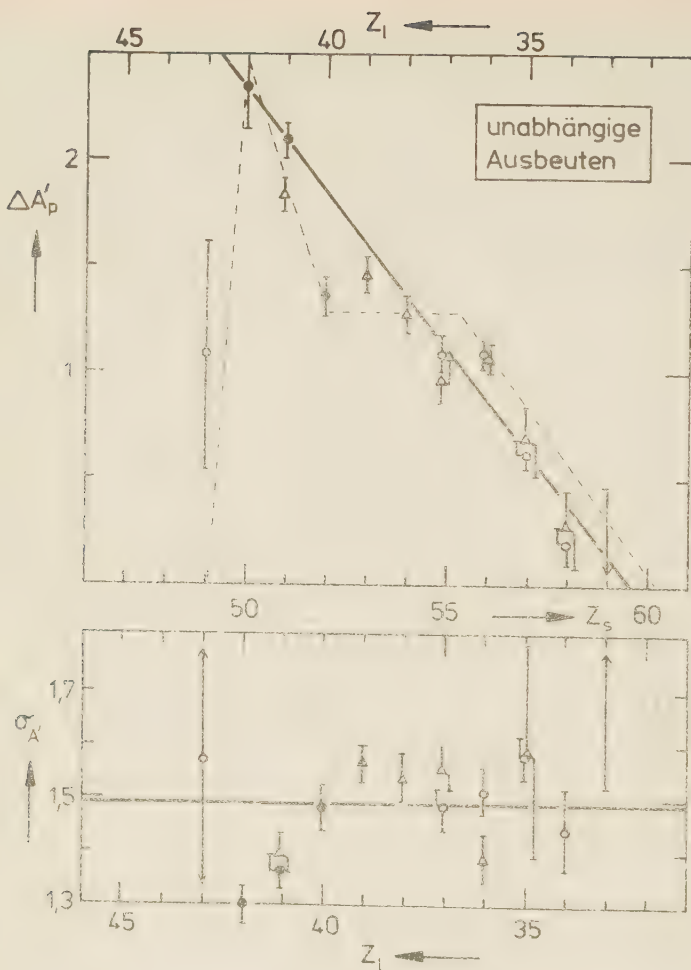


Abb. 29: Parameter der Isotopenverteilung $\Delta A'_p$ und σ_A ,
als Funktion der Kernladung Z :

Analyse der unabhängigen Daten

Volle Punkte: Diese Arbeit

Offene Punkte: Ref. /10,57,68,98-107/

Kreise: leichter Ast; Dreiecke: schwerer Ast

Gepunktete Kurve: A. C. Wahl /97/



Abb. 2: Parameter der Isotopenverteilung $\Delta A_p'$ und $\sigma_{A'}$ als Funktion der Kernladung Z

Analyse der fraktional unabhängigen Daten

Symbole: wie Abb. 29

Komplementäre Fragmente wurden zusammenanalysiert

Der Vergleich der beiden $\Delta A_p'$ -Funktionen (Abb. 29 + 30) zeigt, daß offenbar bei der Analyse der unabhängigen Ausbeutedaten der Verlauf der Massenverteilungskurve abgebildet wird. Beide Geraden schneiden sich nämlich bei den Elementen Rb-Sr (bzw. Xe-Cs), d. h. in einem Gebiet, wo die Massenausbeuten praktisch konstant sind oder wenigstens die Abweichungen symmetrisch um einen Mittelwert verteilt sind. Die leichte (schwere) Flanke bewirkt beim Übergang auf die fraktionale Darstellung eine Anhebung der $\Delta A_p'$ -Werte, während die Flanken nahe der Symmetrie eine Absenkung erzwingen.

Beide Darstellungsarten haben für die folgenden Betrachtungen spezifische Vor- und Nachteile, so daß es nicht sinnvoll erscheint, nur eine Methode im weiteren zu verwenden.

6.3.2 Vergleich der Beschreibungsmethoden

Der kritischen Beurteilung der Beschreibungsmethoden von Ladungs- und Isotopenverteilung liegen zwei verschiedene Gesichtspunkte zu Grunde: Zum einen der mehr technisch-mathematische Aspekt, zum anderen die Frage, zu welchem Zweck eine genaue Kenntnis der Spaltausbeuten notwendig ist.

Der technisch-mathematische Gesichtspunkt betrifft im wesentlichen die Fitbarkeit, der nach den genannten Methoden erhaltenen Gausskurven. Die Ladungsverteilung ist normalerweise mit nur 3-4 Ausbeutedaten belegt, ganz selten findet man 5 Daten oder mehr innerhalb einer Isobarenkette. Dazu weichen diese ohnehin wenigen Punkte von der idealen Gausskurve durch den Protonen-gerade-ungerade Effekt ab, der eine Verschiebung um jeweils $\pm 22-26\%$ /113, 22, 26, 97/ bewirkt. Dagegen ist die Isotopenverteilung meist mit 5 bis über 10

Daten belegt, wobei sich diese Zahl verdoppeln kann, falls man das komplementäre Fragment - bei $A'^* = 236 - A'$ - zur Analyse mitverwendet. An Paarungseffekten ist hierbei nur der für die Neutronen zu beachten, der aber mit einem Einfluß von 7-9% /113, 22, 26, 97/ für die Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ innerhalb üblicher Fehlergrenzen bleibt. Die größere Zahl von Meßpunkten pro Elementpaar und der geringe Einfluß von Struktureffekten drückt sich natürlich in einem größeren Gewicht und einem kleineren Fehler für die Parameter der Gaussfunktion aus.

Bei der Berechnung von ΔZ aus Z_p (Gleichung 6.8) macht sich störend die Unsicherheit in der Zahl der prompten Neutronen für die einzelnen Massen bemerkbar. In die Bestimmung der Isotopenverteilung gehen dagegen eine Vielzahl von $\nu(A)$ -Werten ein, so daß der recht gut bekannte Trend der sog. 'Sägezahn'-Funktion /114, 18/ die wesentliche Rolle spielt, was den Gesamteinfluß deutlich reduziert.

Die höhere Genauigkeit in den Parametern bringt auch Vorteile für die Vorhersage von unbekannten Spaltausbeuten nach dem Modell der Isotopenverteilung. Auch die praktisch konstanten Werte von $\Delta A_p'$ und $\sigma_{A'}$ aus der Analyse fraktionaler Daten vereinfachen diese Abschätzung sehr wesentlich.

Für die Untersuchung des Mechanismus der Kernspaltung wird die ΔZ -Funktion dennoch ihre Bedeutung behalten. Das Zutreffen bestimmter Modelle, z. B. UCD-, MPE-Modell /111/, läßt sich an dieser Darstellung besser überprüfen.

Beide Techniken haben also ihre Berechtigung. Ihre Anwendung hängt aber entscheidend von der Problemstellung ab.

6.3.3 Zusammenhänge $\Delta A - \Delta Z$

Aus unabhängigen Kr- und Xe-Ausbeuten bestimmten R. Brissot et al. /100/ $\Delta A_p'$ -Werte, die sie nach Gleichung 6.10 in ΔZ -Werte umrechneten:

$$\Delta Z = \Delta A_p' \cdot \frac{Z_f}{A_f} \quad (6.10)$$

Es konnte gute Übereinstimmung mit experimentellen, aus der Ladungsverteilung ermittelten ΔZ -Werten festgestellt werden. Dieser Eindruck ist aber zufällig entstanden: Wendet man nämlich diesen linearen Zusammenhang auf andere $\Delta A_p'$ -Werte (Abb. 29) an, so wird genau die Steigung dieser $\Delta A_p'$ -Funktion in ΔZ abgebildet. Der so errechnete Kurvenverlauf deckt sich aber nicht mit der eher horizontal verlaufenden ΔZ -Funktion (Abb. 27), die aus der Ladungsverteilung bestimmt wurde. Beide Kurven schneiden sich aber im Gebiet um $A \approx 95$ (bzw. 141), d. h. $Z \approx \text{Kr-Rb}$ (bzw. Xe-Cs), also gerade bei den Elementen, die die Autoren /100/ untersuchten und auch genau da, wo $\Delta A_p'$ -Werte aus unabhängiger und fraktionaler Auswertung zusammenfallen.

Führt man nun die Rechnung nach Gleichung 6.10 nicht mit den $\Delta A_p'$ -Werten der Analyse absoluter Ausbeuten durch, sondern verwendet die Resultate der fraktionalen Auswertung (Tab. 25, Abb. 30), so erhält man ΔZ -Werte als Funktion von A_p' , die über den gesamten Massenbereich gut mit ΔZ -Werten aus der Ladungsverteilung übereinstimmen. In Abb. 31 werden daher die nach Gleichung 6.10 errechneten ΔZ -Daten mit dem OSZ-Modell von A. C. Wahl /97/ verglichen. Der Einfluß des $Z = 50$ Schalenabschlusses, wie auch die Oszillationen durch den Protonenpaarungseffekt /97/ werden durch diese Umrechnung erstaunlich gut wiedergegeben.

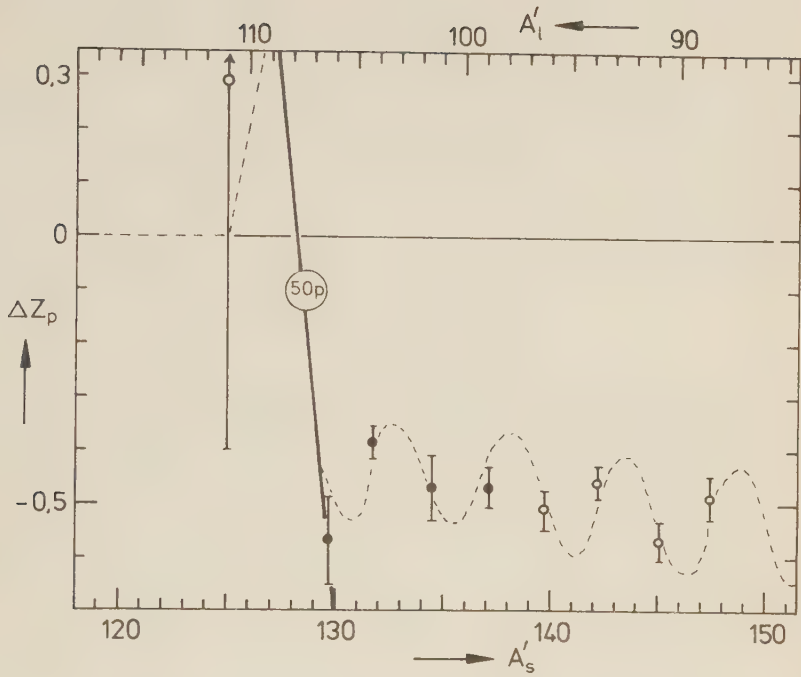


Abb. 31: Parameter ΔZ der Ladungsverteilung, errechnet aus A_p'
gestrichelte Linie: A. C. Wahl /97/
volle Punkte: diese Arbeit
offene Punkte: Ref. /10,57,68,98-107/

Aus dem gewichteten Mittelwert der $\Delta A_p'$ -Werte der fraktionalen Auswertung:

$$\overline{\Delta A_p'} \text{ (fraktional)} = 1,26 \pm 0,02$$

errechnet sich dann nach (6.10) ein Mittelwert für ΔZ :

$$\overline{\Delta Z} \text{ (aus } \Delta A_p') = 0,49 \pm 0,01,$$

der mit ΔZ aus der Analyse der Ladungsverteilung (Tab. 24, Abb. 27) verglichen werden kann:

$$\overline{\Delta Z} \text{ (experimentell)} = 0,47 \pm 0,01$$

Die Übereinstimmung ist recht gut. Für die Abschätzung unbekannter Ausbeuten von wenig untersuchten spaltbaren Kernen gibt also die Kenntnis der Parameter einer einzelnen gut belegten Isotopenverteilungskurve eine vernünftige Basis sowohl einer ΔZ - wie einer ΔA -Systematik. Messungen solcher Verteilungen sind für Alkalien und Edelgase recht einfach durchzuführen und bieten sich daher für solche allgemeinen Vorhersagen an.

6.3.4 Effekte der Protonenstrukturen

Bei der Analyse der Isotopenverteilung unabhängiger (d. h. absoluter) Ausbeutedaten ist ein Parameter noch offengeblieben: Die Fläche unter den Gausskurven, die gerade die Gesamtausbeute des Elementes Z darstellt. Wie bereits aus Abb. 28 qualitativ hervorgeht, fallen diese Flächen sehr unterschiedlich aus; deutlich ist beispielsweise ein großer Sprung von Tc gegenüber Mo zu beobachten. Der Grund für diese Unterschiede liegt in dem Einfluß von Protonenstrukturen, also von Schalenabschlüssen und Paarungseffekten.

Die quantitative Erfassung der Protonenpaarung oder des gerade-ungerade-Effekts wurde bisher mit einer Reihe unterschiedlicher Methoden durchgeführt, die im folgenden kurz umrissen werden sollen.

S. Amiel et al. /113/ beziehen die experimentellen, allerdings 'corrected' Elementausbeuten auf sog. 'normal yields', die aus der Ladungsverteilung berechnet wurden auf Basis konstanter Parameter: $\Delta Z = 0,45$, $\sigma_Z = 0,62$ /79/. Diese Werte sind aber in der Zwischenzeit als überholt anzusehen /97/. Ergebnis: Gerade-ungerade-Effekt für Protonen $\bar{\Delta}_p = (22 \pm 5,4)\%$ für $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$.

Die Gruppen H.-G. Clerc et al. /22/ und G. Siegert, H. Wollnik et al. /26/ berechnen den Paarungseffekt nach einer Methode von B. L. Tracy et al. /115/. Die Verteilung der Elementausbeuten wird dabei als stückweise gaussförmig angenommen und die Abweichungen von einem Mittelwert über jeweils vier Z's gemittelt. Ergebnisse: Paarungseffekt ist etwas Z-abhängig, $\bar{\Delta}_p = (22 \pm 1)\%$ /22, 26/.

Im EOZ-Modell von A. C. Wahl /97/ wird der gerade-ungerade-Effekt als Korrekturfaktor aus der Analyse der Ladungsverteilungsfunktion entnommen. Als Mittelwert resultiert für die Reaktion $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$: $\bar{\Delta}_p = (26 \pm 2)\%$.

Alle bisher beschriebenen Methoden sind mehr oder weniger stark modellabhängig (ohne daß dies zum Teil explizit ausgedrückt wird) oder sie verschmieren den Effekt über mehrere Z's /115/. Darum soll hier ein unabhängiges Verfahren vorgeschlagen werden:

In Abb. 32 sind die Elementausbeuten, die in dieser Arbeit bestimmt (Tab. 26) oder aus dem bereits beschriebenen Datensatz errechnet wurden, als Funktion der Kernladung dargestellt. Deutlich ist erkennbar, daß Elementausbeuten mit

geradem Z größer sind als die der direkten Nachbarn ungeraden Z's. Daher wurden an Elemente mit gerader bzw. ungerader Ordnungszahl zwei getrennte Gausskurven (FITEXS /39/) angefitet, deren Funktionswerte an der Stelle Z gemittelt wurden. Zum praktisch gleichen Ergebnis kommt man, wenn alle Elementausbeuten durch eine Gausskurve beschrieben werden, falls gleich viele Daten gerader wie ungerader Elemente zur Verfügung stehen.

Z	Elementausbeute Y(Z) %	Funktionswert der mittl. Gausskurve a. d. Stelle Z	Protonenstruktureffekt Δ %
^{39}Y (53 $^{\text{J}}$)	12,39 $\pm$ 0,34	15,99	-29,1 $\pm$ 3,4
^{40}Zr (52 $^{\text{Te}}$)	16,71 $\pm$ 0,56	12,68	+31,8 $\pm$ 4,4 ¹
^{41}Nb (51 $^{\text{Sb}}$)	9,10 $\pm$ 0,32 (7,78 $\pm$ 0,34)	8,51	-0,8 $\pm$ 2,4
^{42}Mo (50 $^{\text{Sn}}$)	3,19 $\pm$ 0,40	4,81	-33,7 $\pm$ 16,7

Tab. 26: Elementausbeuten und Protonenstruktureffekte für Y - Mo

(Fehler an Δ : berücksichtigt Fehler an Y(Z)
bzw. am gewichteten Mittelwert
von komplementären Y(Z)'s)

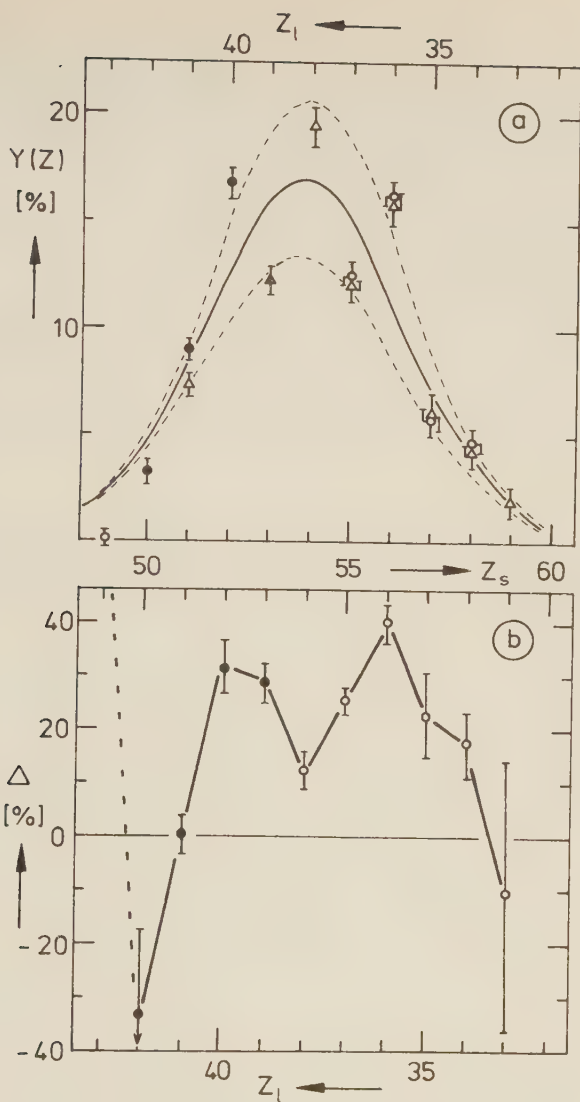


Abb. 32: a. Elementausbeuten als Funktion von Z
 ● leichter Ast, Δ schwerer Ast

volle Punkte: Diese Arbeit

offene Punkte: Ref. /10,57,68,98-107/

gestrichelt: Gausskurve durch gerade/ungerade Daten

durchgezogen: Mittlere Gausskurve

b. Protonenstruktureffekt als Funktion von Z

Einen mittleren Wert für den gerade-ungerade-Effekt erhält man, wenn man die Fläche unter den Gausskurven für gerade und ungerade Z's mit dem Mittelwert von beiden vergleicht. Aus den Fits wurde entnommen:

$$F_Z \text{ (unger.)} = (84,2 \pm 2,1)\% \text{ und}$$

$$F_Z \text{ (gerade)} = (122,6 \pm 5,1)\%.$$

Das ergibt einen mittleren gewichteten Protonenpaarungseffekt von:

$$\bar{\Delta} = (21 \pm 1)\%.$$

Dieses Ergebnis stimmt recht gut mit den nach anderen Methoden ermittelten Werten von 22% /22, 26, 113/ bis 26% /97/ überein.

Ein präziseres Bild über den Einfluß von Protonenstrukturen auf die Fragmentausbeuten der Kernspaltung erhält man, wenn die jeweiligen Meßwerte der Elementausbeuten auf die Funktionswerte der mittleren oder gemittelten Gausskurve bezogen werden. Die gewonnenen Daten sind in Abb. 32 unten als Funktion der Kernladung Z dargestellt. Die Werte für ungerade Z's sind dabei mit (-1) multipliziert worden.

Qualitativ fällt zunächst ins Auge, daß die Kurve eine deutliche Struktur aufweist. Bei $Z = 50/42$ ist ein sehr starker Einbruch zu beobachten, was bedeutet, daß dieses Elementpaar entgegen der Erwartung nicht bevorzugt gebildet wird. Dieses Verhalten läßt sich dadurch erklären, daß ein Zerreißen genau entlang einer vorgebildeten 50-Protonenschale sehr unwahrscheinlich ist. Zusätzliche Nukleonen aus dem Hals, der im "Hantelmodell" /116-118/ die beiden sich bildenden Fragmente verbindet, sorgen dafür, daß eher ein Z um 52/40 erreicht wird. Die Tatsache, daß die abgeschlos-

sene Protonenschale praktisch nicht verletzt wird, zeigt sich in der sehr geringen $_{43}\text{Tc}$ -Elementausbeute von kleiner als 0,19% und als Folge davon in der starken Oszillation um $Z = 49-52$ bzw. $40-43$ in Abb. 32 unten. Das Minimum bei $Z = 59$ bzw. 33 könnte möglicherweise der Ausdruck der abgeschlossenen 50 -Neutronenschale des leichten Fragments sein. Das dritte Minimum bei $Z = 54/38$ kann aus dem Modell von B. D. Wilkins et al. /7/ erklärt werden: Bei $Z = 38$ wird bei einer mittleren Deformation ein Potentialminimum postuliert, d. h., daß auch bei diesem Elementpaar eine Art Schaleneffekt spürbar wird, der aber - auch dies ist dem Modell zu entnehmen - weniger stark ausgeprägt ist, als der der 'klassischen' Schalen.

Die hier gewählte Darstellung berücksichtigt also Effekte, die von der Protonenpaarung herrühren, wie auch von Protonenschalen. Aus diesem Gesichtspunkt erscheint es nicht sinnvoll, von einem "gerade-ungerade-Effekt" alleine zu sprechen; statt dessen wurde der Begriff "Einfluß von Protonenstrukturen" gewählt.

Der Verlauf der Funktion in Abb. 32 unten wird, was das Minimum bei $Z = 38$ betrifft, von H.-G. Clerc et al. /22/ bestätigt, während über $Z = 50$ von diesen Autoren - aufgrund der Auswertemethode - keine Aussage gemacht werden kann. G. Siegert et al. /26/ finden eine nur schwach ausgeprägte Struktur mit Maxima bei $Z \approx 32$ und 39 und Minima bei $Z \approx 33$ und 37 .

6.3.5 Einfluß der 82 -Neutronenschale

Betrachtet man noch einmal Abb. 28, so fällt auf, daß einzelne Punkte der schweren Fragmente deutlich über den Kurven liegen. Sie wurden deshalb für die Fits nicht verwendet. Der Grund für diese Diskrepanzen liegt in der Neu-

tronenstruktur dieser Kerne: Sie weisen alle den 82-Neutronen-Schalenabschluß auf. Bezieht man nun die Ausbeutemeßwerte dieser Kerne auf den Funktionswert der ungestörten Gaußkurve an derselben Stelle, so erhält man ein Maß für den Einfluß dieser Schale auf die Bildung von bestimmten Spaltprodukten. In Tab. 27 ist dies durchgeführt.

Nuklid	unabhängige Ausbeute /%/	Funktionswert d. Isotopenverteil.	$\Delta_{82N}/\%$
$^{132}_{\text{Sn}}_{82}$	$0,58 \pm 0,03$ /103/	0,35	66
$^{133}_{\text{Sb}}_{82}$	$3,05 \pm 0,2$ /119/	1,62	88
$^{134}_{\text{Te}}_{82}$	$6,2 \pm 0,5$ /104/	4,41	41
$^{135}_{\text{J}}_{82}$	$3,1 \pm 0,1$ /10/	2,05	51

Tab. 27: Einfluß der 82-Neutronenschale

Im Mittel sollte man also mit einer Bevorzugung von $N = 82$ -Produkten von etwa 60% rechnen können.

6.4. Spinverteilung

Die Vorstellungen zum Ablauf der Kernspaltung in der Nähe von Sattelpunkt, Zerreißpunkt und bei gerade einsetzender Coulomb-Abstoßung der gebildeten Fragmente liegen noch sehr stark im Dunkeln. Auch theoretische Beschreibungen

waren bisher nicht in der Lage, die experimentellen Informationen im Ganzen zu reproduzieren /z. B. 7, 120/. Eine wesentliche Hilfe für das Verständnis der Vorgänge in der Gegend um den Zerreißpunkt kann die Kenntnis der Drehimpulsverteilung der primären Spaltfragmente sein.

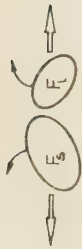
Ursache für diesen Drehimpuls ist die Tatsache, daß die Fragmente bei der Kernspaltung meist deformiert gebildet werden und eine geringe Auslenkung gegenüber der Richtung der Spaltachse genügt, um beim Einsetzen der Coulombabstoßung einen Spin zu induzieren /121/. Diese Primärverteilung drückt sich nun leider nicht ungestört in meßbaren Eigenschaften der Spaltprodukte aus, die für den Kernchemiker zu handhaben sind. Durch welche Prozesse die primäre Drehimpulsverteilung verändert wird, ist in Abb. 33 schematisch dargestellt.

Zunächst regen sich die Fragmente durch Abdampfung einer unterschiedlichen Zahl von prompten Neutronen ab. Die Parameter, die die Veränderung der Primärverteilung beeinflussen, sind in Abb. 33 ebenfalls eingetragen und werden im Zusammenhang mit den Rechenmethoden erklärt werden. Teile der Restanregungsenergie werden durch Emission prompter Gammaquanten abgegeben, die gegen Ende dieses Prozesses in - oft bekannte - Niveaus des Produktkerns münden. Wie aus der Zeitskala abzulesen ist, können Messungen praktisch nur an den letztlich resultierenden Spaltprodukten durchgeführt werden.

6.4.1 Meßmethoden und bisher vorliegende Ergebnisse aus Experiment und Theorie

Drehimpulse primärer Fragmente wurden bisher auf verschiedenen Wegen bestimmt oder abgeschätzt. Die Methoden sollen im folgenden kurz angedeutet werden:

Zeitskala:
 $\sim 10^{-20}$ s



Notwendige
 Parameter:

n_1 (prompt)

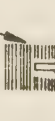
$\sim 10^{-16}$ s



$N_h, \bar{E}_h, \sigma_h, \tau(E_h)$

n_2 (prompt)

$\sim 10^{-11}$ s



γ (prompt)

$N_\gamma, \bar{E}_\gamma, \sigma_\gamma, \delta_\gamma$

$\sim 10^{-9}$ s



I^I (Isomer)

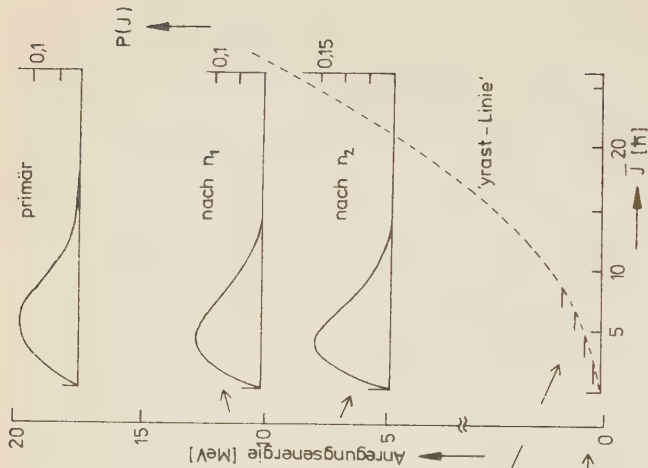
I^I (Grundzust.)

Grundzustand

Abb. 33:

a. Schematische Darstellung der
 Abregung primärer Spaltfrag-
 mente

(In Anlehnung an J. B. Wilhelmy et al. /124/, Zeitskala nach J. E. Gindler et al. /16/, Definition der Symbole im Text)



b. Schema der Drehimpulsverteilung,
 primär, nach Neutronenemission

1. Aus der Anisotropie prompter γ -Strahlung

Die Winkelverteilung prompter Gamma's ist nach einem Ansatz von V. M. Strutinsky /122/ vom Drehimpuls der primären Fragmente abhängig. Aus der Messung dieser Winkelverteilung schätzten M. M. Hoffmann /121/ und P. Armbruster et al. /123/ mit verschiedenen Modellannahmen einen primären Drehimpuls von $\approx 7 \pm 2 \hbar$ /121/ bzw. $\approx 15 \hbar$ für $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ ab.

2. Aus der Multiplizität prompter γ -Strahlung

H. Maier-Leibnitz et al. /125/ und F. Pleasonton et al. /17/ bestimmten die Anzahl der prompten γ -Quanten als Funktion der Fragmentmasse für die Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$. Unter der Annahme, daß der wesentliche Beitrag zur Reduktion des Primärdrehimpulses durch Emission prompter Gamma's geleistet wird und daß die gemessenen γ -Quanten überwiegend E 2-Übergänge darstellen, läßt sich näherungsweise ein mittlerer Drehimpuls der primären Fragmente abschätzen. (Resultat: s. Abb. 34).

3. Aus Intensitäten von γ -Übergängen in Grundzustandsbanden

In einem physikalischen Mehrparameterexperiment wurden von J. B. Wilhelmy et al. /124/ die Intensitäten von Gammakaskaden innerhalb der Grundzustandsbande von g,g-Kernen nach der Reaktion $^{252}\text{Cf}(sf)$ gemessen. Die Berechnung primärer Drehimpulse wurde auf zwei Wegen durchgeführt: 1. Vergleich mit den Intensitäten nach (q, xn)-Reaktion, für die der Compoundkerndrehimpuls berechnet werden kann; 2. Nach dem Formalismus von R. Vandenbosch und J. R. Huizenga (s. Kap. 6.4.2). Ergebnis: Mittlerer Drehimpuls $\approx (7 \pm 2) \hbar$ für $^{252}\text{Cf}(sf)$.

4. Aus der unabhängigen Bildung von Isomerenpaaren

Radiochemische Messungen können dann durchgeführt werden, wenn angeregte Zustände und Grundzustände von Isomerenpaaren

mit Halbwertszeiten von ≥ 1 s existieren. Die primäre Speisung des jeweiligen Zustands wird dabei durch die Drehimpulsverteilung vor Emission des letzten γ -Quants festgelegt, durch das der Übergang in die beiden Isomere erfolgt. Für eine allgemeine Abschätzung wird angenommen /126/, daß bei sehr hohem primärem mittlerem Drehimpuls eine hohe Ausbeute an Hochspinisomer zu erwarten ist.

Diese Untersuchungsmethode ist bisher meist auf längerlebige Nuklide /127-129/ oder abgeschirmte Kerne beschränkt geblieben /128/. Erst durch Anwendung schneller chemischer Trennverfahren, wie sie auch in dieser Arbeit benutzt wurden, ist es möglich geworden, auch sehr kurzlebige Isomere zu erfassen und die sonst notwendigen Korrekturen für ebenfalls sehr instabile β -Vorläufer klein zu halten.

Der zur Berechnung von primären Drehimpulsen aus Isomerenverhältnissen notwendige Rechenformalismus wird zusammen mit den Ergebnissen in Kap. 6.4.2 besprochen werden.

Theoretische Betrachtungen bestätigen qualitativ die experimentellen Befunde: V. M. Strutinsky /122/ schätzt einen konstanten Drehimpuls von $\approx 10 \hbar$ pro Fragment ab, der von der Coulombabstoßung einer nicht-axial-symmetrischen Konfiguration am Zerreißpunkt herrührt. J. O. Rasmussen et al. /130/ errechnen für ein Fragment komplementär zu einem doppeltmagischen, d. h. sphärischen Kern, einen Primärspin von $\approx 8 \hbar$.

Durch ein Modell von M. Zielinska-Pfabé und K. Dietrich /131, 132/, in dem die Drehimpulsverteilung aufgrund von Biegeschwingungen zweier sich bildender deformierter Fragmente berechnet werden kann, wird die Abschätzung von F. Pleasonton et al. /17/ aus γ -Multiplizitäten (s. Abb. 34) sehr gut nachvollzogen.

6.4.2 Vandenbosch - Huizenga-Modell

Eine Methode zur Berechnung der Drehimpulsverteilung von Compoundkernen nach (n, γ) - oder (γ, n) -Reaktionen wurde auf der Basis des statistischen Modells von R. Vandenbosch und J. R. Huizenga /133, 134/ eingeführt. Von H. Warhanek et al. /135/ wurde dieser Formalismus erstmals auf Probleme der Kernspaltung angewandt.

Von den Autoren wird dabei angenommen, daß die primären Fragmente mit einer Drehimpulsverteilung gebildet werden, deren Form der Spinabhängigkeit der Niveaudichte entspricht /130, 135/:

$$P(J) \sim (2J+1) e^{-\frac{(J+1/2)^2}{B^2}} \quad (6.12)$$

In dieser Gleichung wird B im allgemeinen als Drehimpulsparameter bezeichnet. Für größere Werte von B entspricht er etwa einem quadratischen Mittelwert der Drehimpulsverteilung /127, 135/. Im folgenden soll jedoch vom mittleren Drehimpuls die Rede sein, der sich aus B gemäß

$$\bar{J} \approx \frac{\sqrt{\pi}}{2} B \quad /124, 127/ \text{ bzw. } \bar{J} = 0,88 J_{\text{rms}} - 1/2 \quad /15/$$

berechnet.

Die ursprüngliche Drehimpulsverteilung wird nun dadurch verändert, daß die hochangeregten Spaltfragmente Anregungsenergie durch Emission prompter Neutronen abgeben, die neben ihrem Spin von $s_n = 1/2$ noch variable Anteile Bahndrehimpuls l wegtragen. Die primäre Spinverteilung wird dann durch die Abgabe eines Neutrons der Energie E_n wie folgt verändert /134/:

$$P(J') \sim P(J) (2J+1) e^{-\frac{(J'+1/2)^2}{2\sigma_n^2}} \sum_{S_n=|J'-1/2|}^{J'+1/2} \sum_{l_n=|J-S_n|}^{J+S_n} T_l(E_n) \quad (6.13)$$

Darin ist:

$T_1(E_n)$ Transmissionskoeffizient für ein Neutron der Energie E_n und dem Bahndrehimpuls 1

σ_n Spin-cutoff-Faktor, berücksichtigt die Drehimpulsabhängigkeit der Niveaudichte

Für den Spin-cutoff-Faktor werden meist Erfahrungswerte benutzt, im allgemeinen 3-5 /127, 134/, selten können Meßdaten aus Kernreaktionen verwendet werden, weil damit nur Nuklide nahe an der Stabilitätslinie erfaßt werden können /136/.

Dieser Rechenformalismus wird wiederholt, falls mehr als ein Neutron emittiert wird und gegebenenfalls zwischen beiden Ergebnissen linear interpoliert, entsprechend der Zahl der Neutronen $N_n(A)$.

Die restliche Anregungsenergie der Fragmente wird in Form von γ -Quanten abgegeben, was die Drehimpulsverteilung wie folgt verändert /133/:

$$P(J'') \sim P(J') (2J''+1) e^{-\frac{(J''+1/2)^2}{2\sigma_\gamma^2}} \quad (6.14)$$

Darin ist:

σ_γ Spin-cutoff-Faktor für Gammastrahlung

Die Emission des letzten γ -Quants bestimmt die Speisung eines der beiden isomeren Zustände. Dabei wird angenommen /133/, daß die Spindifferenz für diesen Übergang möglichst gering sein soll. Zustände, deren Spin genau zwischen dem der Isomere liegt, sollen so abgeregt werden, daß beide Isomere je zur Hälfte gespeist werden.

Folgende Parameter werden also für die Rechnungen benötigt:

N_n	Zahl der prompten Neutronen aus $\bar{v} = f(A)$	—————→	z. B. /18, 94/
$\bar{E}_n$	mittlere Energie der Neutronen	—————→	z. B. /18/ meist aber ~1 MeV
σ_n	Spin-cutoff-Faktor für Neutronen	—————→	selten meßbar /136/ meist 3-5
$T_1(E_n)$	Transmissionskoeffizient für Neutronen, berechenbar aus dem optischen Modell /137/		
N_γ	Zahl der prompten γ -Quanten als $f(A')$	—————→	z. B. /17/ für $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ meist aber variiert, 3-4
$\bar{E}_\gamma$	mittlere γ -Energie	—————→	z. B. /17/
σ_γ	Spin-cutoff-Faktor für Gammas	—————→	meist 3-4 ($\leq \sigma_n$)
δ_γ	Multipolarität der Gammas und Auswahlregeln	—————→	meist E 1 Übergänge/128/

Wie man erkennt, werden für viele Parameter Erfahrungswerte verwendet, die die Rechnungen teilweise vereinfachen sollen.

Zur Anwendung dieses Modells müssen darüberhinaus eine Reihe von Bedingungen erfüllt sein, die sich aus dem statistischen

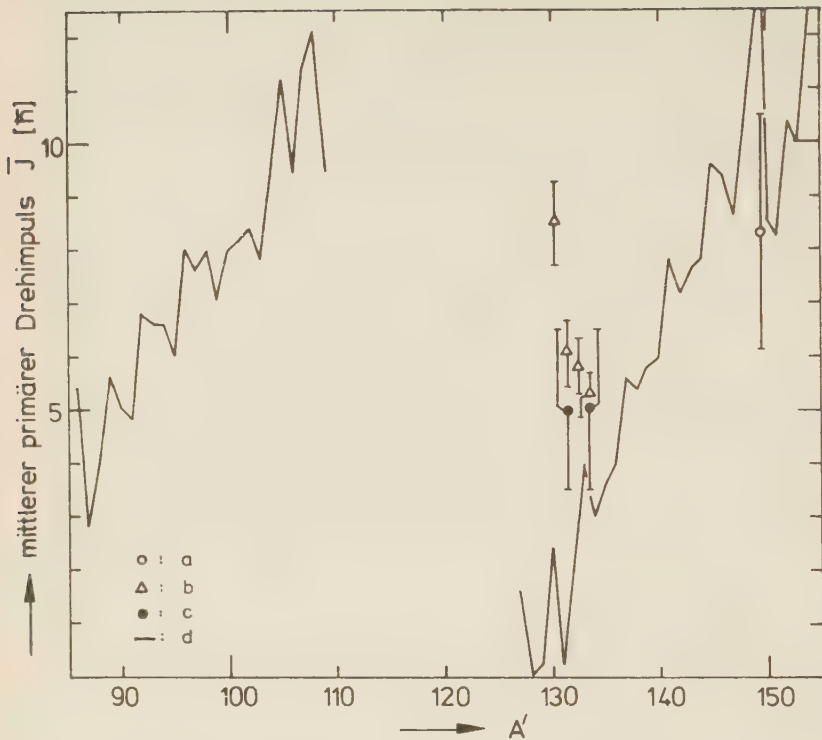


Abb. 34: Mittlerer Drehimpuls der primären Fragmente als Funktion der Fragmentmasse A'

a: /128/; b: /129/; c: /127/; d: /17/, entspricht auch etwa den theoretischen Rechnungen in Ref. /131, 132/

Ansatz ableiten /133/: Vor allem müssen für alle Abregungsprozesse eine große Zahl von Niveaus für viele verschiedene Kaskadenwege zur Verfügung stehen. Inwieweit alle genannten Annahmen und Vereinfachungen gerechtfertigt sind, soll in Kap. 6.4.5 diskutiert werden.

Einige Ergebnisse dieser Rechnungen /127, 128, 129/ zeigt Abb. 34 als Funktion der Fragmentmasse. Mitaufgenommen sind die Abschätzungen aus γ -Multiplizitäten von F. Pleasonton et al. /17/ (s. Kap. 6.4.2). Die Übereinstimmung der verschiedenen Meß- und Auswertemethoden ist nicht sehr gut; insbesondere das Resultat für ^{130}Sb /129/ fällt etwas heraus, während die Daten für ^{131}Te , ^{132}Sb und ^{133}Te aus Isomerenverhältnissen /127, 129/ recht gut reproduzierbar sind. Aus den radiochemischen Messungen folgt ein Mittelwert von $\bar{J} \approx (6,3 \pm 1,5) \hbar$.

6.4.3 Madland - England - Modell:

Vorhersage von Isomerenverhältnissen

Das Vandenbosch-Huizenga-Modell zur Berechnung von primären Drehimpulsen aus Isomerenverhältnissen wurde von D. G. Madland und T. R. England /138/ umgekehrt, um bei festgehaltenem $\bar{J}$ die unabhängige Speisung von Isomerenpaaren zu berechnen. Neben den Annahmen und Bedingungen, die bereits durch den statistischen Ansatz gegeben sind, wurden eine Reihe weiterer Vereinfachungen angebracht:

Der mittlere Drehimpuls soll für alle spontanspaltenden oder thermisch spaltbaren Actiniden einen konstanten Wert von 6,2 besitzen.

Änderungen der primären Drehimpulsverteilung durch Emission prompter Neutronen soll vernachlässigbar sein.

Es sollen nur γ -Quanten der Multipolordnung 2 emittiert werden.

Isomerenverhältnisse sollen damit nach Gleichung 6.15 zu berechnen sein:

$$F_H = \frac{Y_{\text{Hochspin}}}{Y_{\text{Hochspin}} + Y_{\text{Niederspin}}} = \frac{\int_{J_C}^{\infty} P(J) dJ}{\int_{0 \text{ oder } 1/2}^{\infty} P(J) dJ} \quad (6.15)$$

Darin bedeuten:

Y Ausbeuten der beiden Isomere

$P(J)$ primäre Drehimpulsverteilung (Gleich. 6.12)

J_C gibt an, welcher isomere Zustand I_m , I_g aus einem Zustand J bei Emission des letzten γ -Quants gespeist wird; analog Vandenbosch-Huizenga-Modell (s. Kap. 6.4.2)

Nach der Integration erhielten die Autoren einen Satz von Gleichungen, in denen als Variable nur noch der primäre Drehimpuls und I_m , I_g auftreten und die sich unterscheiden, je nachdem ob A bzw. der Betrag der Spindifferenz gerade oder ungerade sind. Damit lassen sich für alle vorkommenden Isomerenpaare bekannten Spins die relativen Bildungsverhältnisse berechnen.

Für die Reaktion $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$ wurden die Ergebnisse an sechs experimentellen Isomerenverhältnissen überprüft: Die Übereinstimmung ist befriedigend, was aber nicht überrascht, denn vier davon wurden zur Festlegung des primären Drehimpulses benutzt! Schlechter wird die Übereinstimmung, wenn man neuere Resultate heranzieht, z. B. ^{132}Sb /139, 140, 141/, ^{134}Sb /104/, ^{133}Te /127, 129, 142, 143/, ^{134}J /144/ sowie die Ergebnisse dieser Arbeit, die im folgenden Kapitel diskutiert werden sollen.

6.4.4 Isomerenverhältnisse dieser Arbeit

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die primäre Speisung der Isomere um $A \approx 100$ näher untersucht. Die Ausbeuten der beiden Zustände von ^{97}Nb und ^{99}Nb sind in Kap. 5. und 3. ausführlich beschrieben. Im Falle von ^{98}Nb konnte nur die Bildung des 51 min $^{98\text{m}}\text{Nb}$ gemessen werden, während aus einer Reihe von Gründen die Ausbeute des 2,9 s $^{98\text{g}}\text{Nb}$ nicht bestimmbar war: Die absolute Intensität der stärksten Linie bei 787 keV beträgt nur 3,2% /63/. Das Bildungs- und Verzweigungsverhältnis der ^{98}Y -Isomere, die den stärksten Anteil an der Kette 98 darstellen, ist noch unbekannt, so daß es nicht möglich ist, die Nachbildung des $^{98\text{g}}\text{Nb}$ aus seinen Vorläufern sicher zu berechnen.

Als ^{98}Nb -Gesamtausbeute wurde deshalb der gewichtete Mittelwert der Ergebnisse physikalischer Messungen /22, 25, 26/ zu $(2,5 \pm 0,8)\%$ eingesetzt. Dieser Wert steht in guter Übereinstimmung mit Abschätzungen aus Ladungs- und Isotopenverteilung (Kap. 6.2. und 6.3.).

Die Ergebnisse für die Isomerenverhältnisse sowie die Vorhersagen nach dem Modell von D. G. Madland und T. R. England /138/ sind in Tab. 27 gegenübergestellt.

Auffallend sind zunächst die extremen Isomerenverhältnisse der Nuklide ^{97}Nb und ^{99}Nb , bei denen fast ausschließlich einmal der Hochspinzustand (^{97}Nb) und einmal der Nieder-spinzustand bevölkert wird. Andererseits wird deutlich, daß weder dem Betrage noch dem Trend nach eine Übereinstimmung mit der Vorhersage festzustellen ist.

Geht man aber zunächst einmal von der Hypothese aus, daß grobe Effekte von diesem Modell vernünftig beschrieben werden können - was bei Betrachtung der Resultate aus dem schweren Ast durchaus gegeben scheint - so ergibt sich die

Nuklid	I^{π}	fraktional unabhäng. Ausbeute /%/	F_H a)	Vorhersage D. G. Madland et al. /138/
^{97}Nb	$9/2^+$ (g)	$\geq 0,20$	$\geq 0,95$	0,812
	$1/2^-$ (m)	$\leq 0,009$		
^{98}Nb	$4^-, 5^+$ (m)	$1,08 \pm 0,11$	$0,43 \pm 0,14$	0,751-0,807
	1^+ (g)	$1,4^b)$		
^{99}Nb	$9/2^+$ (g)	$0,7 \pm 1,4$	$0,06 \pm 0,14$	0,812
	$1/2^-$ (m)	$11,1 \pm 2,2$		

a) $F_H = \frac{Y_{\text{Hochspin}}}{Y_{\text{Total}}}$

b) nach Ref. /22, 25, 26/,
siehe Text

Tab. 27: Isomerenverhältnisse der Nuklide $^{97-99}\text{Nb}$ in
der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{th}, f)$

Möglichkeit, den Formalismus wieder umzukehren und dann aus experimentellen Isomerenverhältnissen näherungsweise einen primären Drehimpuls zu berechnen. Für die Isomerenpaare ^{97}Nb und ^{99}Nb gilt dann nach /138/:

$$F_H = e^{\frac{1}{J^2}} \left[e^{-\frac{1}{J^2} \left(\frac{I_h + I_l + 3}{2} \right)^2} + \right. \\ \left. + \frac{1}{J^2} \left(\frac{I_h + I_l + 1}{2} \right) e^{-\frac{1}{J^2} \left(\frac{I_h + I_l + 1}{2} \right)^2} \right].$$

Im Falle von ^{98}Nb gilt, je nach gewählten Spins der Isomere:

für 1^+ und 4^- /63/:

$$F_H = e^{-\frac{1}{J^2} \left(\frac{I_h + I_l + 1}{2} \right) \left(\frac{I_h + I_l + 3}{2} \right)} ;$$

für 1^+ und 5^+ /83/:

$$F_H = e^{-\frac{1}{J^2} \left(\frac{I_h + I_l + 2}{2} \right) \left(\frac{I_h + I_l + 4}{2} \right)} + \\ + \frac{1}{J^2} \left(\frac{I_h + I_l + 1}{2} \right) e^{-\frac{1}{J^2} \left(\frac{I_h + I_l}{2} \right) \left(\frac{I_h + I_l + 2}{2} \right)}.$$

In diesen Gleichungen bedeuten:

F_H Isomerenverhältnis, $\frac{Y_{\text{Hochspin}}}{Y_{\text{Total}}}$

I_h, I_l Spin der beiden Isomere

J^2 Quadrat von J_{rms}

Zur Bestimmung von J^2 variiert man diesen Wert solange, bis das experimentelle F_H erhalten wird. Führt man diese Rechnungen durch, so erhält man folgende primären Drehimpulse (Tab. 28):

Nuklid	I^π	Mittlerer Drehimpuls $\bar{J} / \hbar /$	
		diese Arbeit (Modell Madland et al. /138/	γ -Multiplizitäten (F. Pleasonton et al. / 17/) a)
$^{97}_{Nb}$	$9/2^+$ (g) $1/2^-$ (m)	$\geq 13,2$	7,5
$^{98}_{Nb}$	4^- (m) 1^+ (g) 5^+ (m) 1^+ (g)	$3,0 \pm 0,9$ $3,4 \pm 0,5$	7,7
$^{99}_{Nb}$	$9/2^+$ (g) $1/2^-$ (m)	$1,0 \pm 0,7$ $1,0$	8,1

a) siehe auch Abb. 34

Tab. 28: Mittlerer Drehimpuls, abgeschätzt durch Umkehrung des Modells von D. G. Madland et al. /138/, verglichen mit Resultaten von F. Pleasonton et al. /17/.

Die mit Hilfe dieser Abschätzung gewonnenen Ergebnisse sollten nun mit den Resultaten von F. Pleasonton et al. /17/ vergleichbar sein: In beiden Fällen wird angenommen, daß Dreh-

impuls im wesentlichen durch Emission von γ -Quanten weggetragen wird und daß der Einfluß der prompten Neutronen vernachlässigbar ist. Dennoch ist auch hier keinerlei Übereinstimmung festzustellen, weder dem Betrage noch dem Trend nach.

Würde man statt dieser Abschätzung den ausführlichen Rechengang nach R. Vandenbosch und J. R. Huizenga /133, 134/ verwenden, so würde kein wesentlich anderes Ergebnis zu erwarten sein, zumindest für ^{97}Nb und ^{99}Nb . Diese beiden Kerne sind nämlich sehr ähnlich, was ihr Niveauschema angeht und auch die übrigen für die Rechnung notwendigen Daten.

Für alle drei betrachteten Kerne sind diese Werte in Tab. 29 zusammengestellt. Man erkennt sehr deutlich die ähnlichen Eigenschaften der Kerne ^{97}Nb und ^{99}Nb , deren Isomerenverhältnisse sich so stark unterscheiden. Es besteht darüberhinaus kein Anlaß zu der Vermutung, daß sich die Spin-cutoff-Faktoren für Gammas und Neutronen beider benachbarter Kerne wesentlich unterscheiden /127/. Das bedeutet, daß sich in der explizit durchgeführten Rechnung ebenso wie in der vereinfachten Abschätzung (Tab. 29) der große Unterschied in F_H für ^{97}Nb und ^{99}Nb voll ausdrücken muß.

Es bleibt also festzuhalten, daß keine Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen für die Nb-Nuklide um $A \approx 100$ und bisherigen Annahmen aus komplementären Fragmenten ($\bar{J} \approx 6 \hbar$) oder Abschätzungen über γ -Multiplizitäten /17/, noch mit theoretischen Überlegungen /131, 132/ zu finden ist.

	⁹⁷ Nb	⁹⁸ Nb	⁹⁹ Nb
	<u>Allgemeine Daten</u>		
T _{1/2}	m 53 s /75/ g 72 min /64/	m 51,3 min g 2,9 s /63/	m 2,8 min g 15 s /diese Arbeit/
ΔE /keV/	743 /64/	84+4 /82/	365 /52,145/
Q _β /MeV/	1,963±0,02 /64/	4,585±0,006 /62/	3,61±0,02 /60/
	<u>Für das Vandenbosch-Huizenga-Modell notwendige Daten</u>		
F _H	≥ 0,95 /diese Arbeit/	0,43±0,14/diese Arbeit/	0,06±0,14 /diese Arbeit/
I ^π	m 1/2 ⁻ g 9/2 ⁺ /64/	m 4 ⁻ ,5 ⁺ /63,83/ g 1 ⁺ /63/	m 1/2 ⁻ g 9/2 ⁺ /52/
ΔJ	4	3,4	4
$\bar{V}$ (A)	1,55 /94/	1,55 /94/	1,54 /94/
$\bar{E}_n$ /MeV/	1,2 /18/	1,25 /18/	1,25 /18/
$\bar{N}_g$	4 /17/	3,8 /17/	4 /17/
$\bar{E}_g$ /MeV/	4 /17/	4 /17/	3,4 /17/
B _n (A+1) /MeV/	6,0 /62/	6,9 /62/	5,7 /62/
B _n (A+2) /MeV/	6,9 /62/	5,7 /62/	7,1 /62/
E [*] _{ges} /MeV/	25 /18/	25 /18/	26 /18/
$\bar{E}_{kin}$ /MeV/	100-102 /22/	100-102 /22/	100-102 /22/
Niveau- schema	/89, 64/	unbekannt	/52/

Tab. 29: Allgemeine Eigenschaften und für Rechnungen nach dem Vandenbosch-Huizenga-Modell notwendige Daten der Kerne ⁹⁷Nb, ⁹⁸Nb und ⁹⁹Nb.

6.4.5 Allgemeine Diskussion des Problembereichs "Primärer Drehimpuls"

Eine Reihe von Diskrepanzen sind in den Betrachtungen bis hierhin deutlich geworden:

Experimentelle Resultate aus der Analyse von Isomerenverhältnissen und γ -Multiplizitäten sind nicht zur Deckung zu bringen (Abb. 34). Rechnungen mit Hilfe der Umkehrung eines vereinfachten Modells (/138/, Kap. 6.4.4) stimmen nicht mit Experimenten /17/ überein, in deren Analyse dieselben Vereinfachungen gemacht wurden. Ältere theoretische Arbeiten /122, 130/ bestätigen die Ergebnisse und Auswertungen von Isomerenexperimenten /127, 128, 129/, während neuere Rechnungen /131, 132/ sich offenbar stark an die Resultate von γ -Multiplizitätsmessungen anlehnen /17/.

Sicher scheint im Moment nur eins zu sein:

Der mittlere Drehimpuls primärer Fragmente der spontanen oder niederenergetischen Spaltung liegt wohl im Bereich von 4-10 Drehimpulseinheiten /17, 121, 122, 124, 126-130, 135/. Darüberhinaus bleibt im Detail eine starke Unsicherheit bestehen.

Worauf ist dies nun zurückzuführen?

In der für die Auswertung der Isomerenexperimente grundlegenden Publikation machen bereits J. R. Huizenga und R. Vandenbosch /133/ einige Einschränkungen, die die Anwendbarkeit dieses Verfahrens betreffen:

Zunächst ist das - dieser Methode zugrundeliegende - statistische Modell nur dann anwendbar, wenn eine genügend hohe Niveaudichte im angeregten Fragment vorhanden ist.

Zum anderen sind die "Rechnungen sehr empfindlich gegen unverstandene Details, wenn eines der beiden Isomere mit sehr

geringer Ausbeute gebildet wird. Eine quantitative Übereinstimmung kann nicht erwartet werden, wenn das Isomerenverhältnis sehr groß oder sehr klein ist".

Bleibt also die Frage: Welche unverstandenen Details könnten das sein und sind die Voraussetzungen des statistischen Modellansatzes erfüllt?

Bei absolut statistisch verteilten γ -Kaskaden, entsprechend also einer hohen Niveaudichte, würde man ein breites strukturloses Spektrum prompter γ -Quanten erwarten. Experimentell wurde aber, vor allem im Bereich von 0,1 - 1 MeV, Peakstruktur gefunden /125, 146/. Das weist darauf hin, daß die Niveaudichte doch geringer ist, als für einen statistischen Ansatz notwendig wäre, oder daß bestimmte Niveaus nicht über Neutronen, sondern nur über γ -Strahlung abgeregt werden können /147/.

Die totale γ -Energie, emittiert pro Spaltung, wurde experimentell zu $7,2 \pm 0,3$ MeV /146, 148/ bestimmt, während J. Terrell /114/ auf Basis einfacher statistischer Argumente eine Energie von etwa 4,9 MeV für die niederenergetische Spaltung von ^{235}U abschätzt. Das bedeutet aber, daß offenbar nicht jede energetisch mögliche Neutronenemission auch stattfindet, sondern daß in bestimmten Fällen ein Zustand hohen Spins nur über γ -Emission abgeregt werden kann. Dies ist dann der Fall, wenn kein niedrig liegendes Niveau hohen Spins zur Verfügung steht, das durch Abgabe eines letzten Neutrons, welches wenig Drehimpuls mitzunehmen in der Lage ist, bevölkert werden könnte /148/. Die Neutronenemission wäre dann durch eine Drehimpulsbarriere behindert, so daß der γ -Zerfall in Konkurrenz treten müßte /147, 150, 151/.

Solche Effekte, die letztlich auf Strukturen im Produktkern zurückzuführen sind, können durch den statistischen Ansatz nicht berücksichtigt werden. In den Rechnungen wird immer davon ausgegangen, daß γ -Emission nur nach abgeschlossener

Neutronenemission stattfindet; Neutronen-Gamma-Konkurrenz wird dabei vernachlässigt.

In den Rechnungen nach dem Vandenbosch-Huizenga-Modell /134, 135/ wird im allgemeinen für die γ -Emission Dipolstrahlung angenommen. Winkelkorrelationsmessungen /121/ jedoch zeigen, daß ein größerer Betrag an Quadrupolstrahlung auftritt. Die Spektren von prompter Röntgenstrahlung /146/, entstanden durch K-Konversion, wurden dahingehend interpretiert, daß für die leichten Fragmente eine reine Multipolordnung ausgeschlossen werden kann, nicht aber für die schweren, wobei hier aber die Abregung durch M 1-Übergänge nicht plausibel erscheint. Die Daten sind mit einer Reihe von Kombinationen verschiedener Multipolaritäten verträglich, auch mit einer 1:1 Mischung von E 1 und E 2. Höhere Multipolordnungen treten offenbar nicht auf, wie aus Lebensdauermessungen hervorgeht /125/. Neuere Messungen bestätigen diese Trends für $^{252}\text{Cf(sf)}$ /149/.

Betrachtet man die Speisung isomerer Zustände von komplementären Fragmenten, beispielsweise $^{41}\text{Nb}/^{51}\text{Sb}$ (Abb. 35), so fällt ein weiteres Detail ins Auge, das in rein statistischen Überlegungen nicht berücksichtigt werden kann: Die Auftragung der Isomerenverhältnisse als Funktion der Fragmentmasse zeigt ein ausgeprägtes Minimum, das durch die abgeschlossene N = 82-Schale gekennzeichnet ist. Die Abhängigkeit wird durch die Vorhersage von Isomerenausbeuten /138/ nicht wiedergegeben. Die Übereinstimmung mit den Experimenten an Sb-Nukliden ist deshalb so gut, weil das Modell an diesen Werten angepaßt wurde. Aus dem gerade beschriebenen Trend fällt nur das ^{134}Sb heraus; das hier formulierte 0,8 s-Isomer /104/ könnte aber auch ein ^{134}Sn sein, was aufgrund seiner Ausbeute in die Isotopenverteilungssystematik von Sn/Mo (Kap. 6.3.1) passen würde. Schaleneffekte könnten also solche "Details" sein, die die Anwendung eines statistischen Modells in Frage stellen.

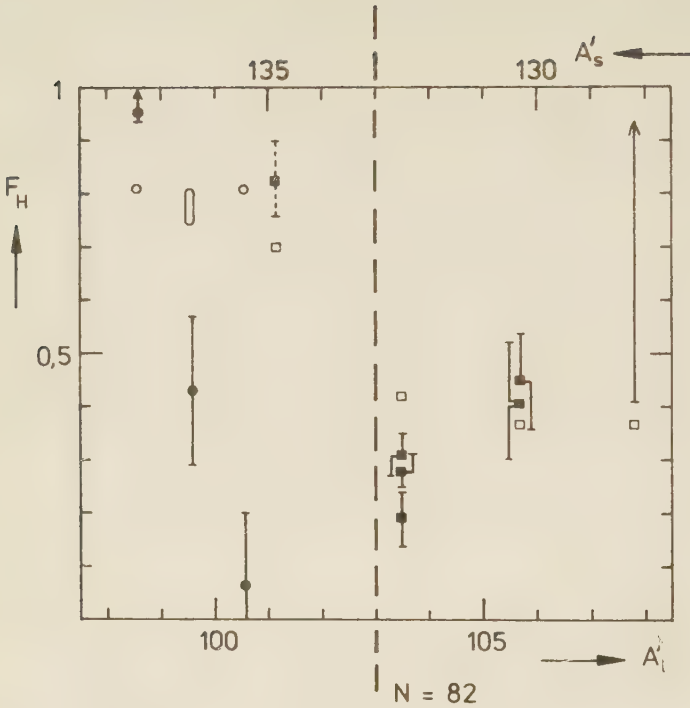


Abb. 35: Isomerenverhältnisse von $_{41}\text{Nb}/_{51}\text{Sb}$ -Nukliden
als Funktion der Fragmentmasse

volle Punkte: Diese Arbeit

volle Vierecke: ^{128}Sb /105,140/; ^{130}Sb /105,129/;

^{132}Sb /129,139,141/; ^{134}Sb /104/;

offene Symbole: Vorhersage /138/

Zusammenfassend läßt sich zur Anwendung eines statistischen Ansatzes zur Berechnung von primären Fragmentdrehimpulsen aus Isomerenverhältnissen folgendes bemerken:

1. Extreme Isomerenverhältnisse, wie sie im Gebiet um $A \approx 100$ auftreten, können durch einen rein statistischen Ansatz nicht richtig beschrieben werden /133/.
2. Strukturen in den Spektren prompter γ -Strahlung /146/ und Neutron-Gamma-Konkurrenzen /148/ zeigen, daß die notwendige Annahme einer Vielzahl möglicher und besetzbarer Niveaus zumindest teilweise nicht gerechtfertigt ist /151/.
3. Reine Multipolordnungen treten offenbar nicht auf; mit gemischten Multipolaritäten, z. B. E 1 und E 2, ist zu rechnen.
4. Effekte höherer Ordnung, wie Schaleneffekte, werden im statistischen Ansatz nicht repräsentiert.

Dieselben Argumente betreffen natürlich auch die Umkehrung des statistischen Modells zur Vorhersage primärer Ausbeuten von Isomerenpaaren /138/. Die Vernachlässigung der prompten Neutronenemission führt dazu, daß Neutron-Gamma-Konkurrenzen überhaupt nicht berücksichtigt werden. Die Festlegung der γ -Multipolordnung auf 1 erscheint ebenfalls nicht gerechtfertigt.

Das letztgenannte Problem trifft auf Berechnung von Drehimpulsen aus γ -Multiplizitäten zu /17, 131, 132/.

7. Zusammenfassung

Mit Hilfe radiochemischer Trennverfahren und γ -spektrometrischer Meßmethoden wurden die fraktional unabhängigen Ausbeuten von Y-, Zr-, Nb- und Mo-Nukliden um $A \approx 100$ in der Reaktion $^{235}\text{U}(n_{\text{th}}, f)$ bestimmt. Folgende Resultate wurden erhalten (in %):

Z	^{39}Y	^{40}Zr	^{41}Nb	^{42}Mo
A				
96	-	-	$(1,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-2}$	-
97	-	-	m: $\leq 0,009$ g: $\geq 0,20$	-
98	-	-	m: $1,08 \pm 0,11$	-
99	$31,4 \pm 3,9^{\text{a})}$	$56,9 \pm 4,9$	m: $11,1 \pm 2,2$ g: $0,7 \pm 1,6$	$< 0,7$
101	$< 6^{\text{a})}$	$53,4 \pm 2,5^{\text{a})}$	$45,2 \pm 2,5$	$1,4^{+3,5}_{-1,4}$
102	-	$52,4 \pm 4,9^{\text{a})}$	$41,0 \pm 3,0$	$6,6 \pm 5,7$
104	-	$\leq 5^{\text{a})}$	Hochspin: ≤ 5 Niedersp: $\geq 37,5$	$\geq 52,5$
105	-	$< 2^{\text{a})}$	$29 \pm 6^{\text{a})}$	70 ± 7

a) fraktional kumuliert

Die gemessenen Ausbeutedaten wurden über Ladungs- und Isotopenverteilungssystematiken in den Gesamtzusammenhang der

Resultate der niederenergetischen Spaltung von ^{235}U gestellt. Es wurde eine Methode vorgestellt, um den Einfluß von Protonenstrukturen, wie Paarungs- und Schaleneffekte, auf die Bildungswahrscheinlichkeit einzelner Nuklide zu quantifizieren. Die Auswirkungen des 82-Neutronenschalenabschlusses und der möglichen Grundzustandsdeformation der leichten Fragmente um $A \approx 100$ wurden diskutiert.

Darüberhinaus wurde die primäre Speisung der isomeren Zustände von ^{97}Nb , ^{98}Nb , ^{99}Nb und ^{104}Nb gemessen. Die daraus abgeleiteten Isomerenverhältnisse zeigen eine Reihe von Besonderheiten: Es wurde in drei Fällen (^{97}Nb , ^{99}Nb , ^{104}Nb) eine deutliche Bevorzugung eines der beiden isomeren Zustände beobachtet, wobei im ^{99}Nb nahezu ausschließlich der Niederspinzustand bevölkert wird. Diese Feststellungen sind kaum vereinbar mit den Annahmen des statistischen Modells, auf dem ein Formalismus zur Berechnung von primären Fragmentdrehimpulsen aus Isomerenverhältnissen beruht. Die Ergebnisse wurden mit Modellvorstellungen zur Vorhersage von Isomerenverhältnissen verglichen. Die auftretenden Unterschiede wurden diskutiert im Hinblick auf die Forderungen des statistischen Ansatzes und das Zutreffen bestimmter notwendiger Annahmen oder Vereinfachungen.

Literaturverzeichnis

- / 1/ O. Hahn und F. Straßmann, Naturwissenschaften 27, 11 (1939) und 27, 89 (1939)
- / 2/ N. Bohr und J. A. Wheeler, Phys. Rev. 56, 426 (1939)
- / 3/ W. D. Myers und W. J. Swiatecki, Nucl. Phys. 81, 1 (1966)
- / 4/ P. Fong, Phys. Rev. 102, 434 (1956)
- / 5/ A. V. Ignatyuk, Sov. J. Nucl. Phys. 9, 208 (1969)
- / 6/ M. G. Mustafa, U. Mosel und H. W. Schmitt, Phys. Rev. C7, 1519 (1973)
- / 7/ B. D. Wilkins, E. P. Steinberg und R. R. Chasman, Phys. Rev. C14, 1832 (1976)
- / 8/ B. D. Wilkins und E. P. Steinberg, Phys. Lett. 42B, 141 (1972)
- / 9/ U. Facchini und G. Sassi, J. Phys. G.: Nucl. Phys. 3, 269 (1977)
- /10/ H. O. Denschlag, Habilitationsschrift, Mainz 1971
- /11/ G. Herrmann, Kernspaltung, gestern und heute; erscheint in : Chemiker-Zeitung
- /12/ H. J. Specht, Rev. Mod. Phys. 46, 773 (1975)
- /13/ D. C. Aumann, Angew. Chem. 87, 77 (1975)
- /14/ D. C. Hoffman und M. M. Hoffman, Ann. Rev. Nucl. Sci. 24, 151 (1974)
- /15/ R. Vandenbosch und J. R. Huizenga, Nuclear Fission, New York 1973
- /16/ J. E. Gindler und J. R. Huizenga, Nuclear Fission, in: L. Yaffee (Herausgeber), Nuclear Chemistry II, New York 1968
- /17/ F. Pleasonton, R. L. Ferguson und H. W. Schmitt, Phys. Rev. C6, 1023 (1972)
- /18/ J. C. D. Milton und J. S. Fraser, Proc. 2nd Sympos. Physics and Chemistry of Fission, Wien 1969, S. 39, IAEA Wien, 1969
- /19/ D. A. Arseniev, A. Sobiczewski und V. G. Soloviev, Nucl. Phys. A139, 269 (1969)
- /20/ N. Kaffrell, G. Franz, G. Klein, K. Sümmerer, G. Tittel, N. Trautmann, G. Herrmann und H. Ahrens, Proc. 3rd Int. Confer. on Nuclei far from Stability, Cargèse 1976, CERN 76-13, S. 483, Genf 1976

- /21/ H.-G. Clerc, K.-H. Schmidt, H. Wolfarth, W. Lang, H. Schrader, K. E. Pferdekämper, R. Jungmann, M. Asghar, J. P. Bocquet und G. Siegert, Nucl. Phys. A247, 74 (1975)
- /22/ H.-G. Clerc, W. Lang, H. Wohlfarth, K.-H. Schmidt, H. Schrader, K. E. Pferdekämper und R. Jungmann, Z. Physik A274, 203 (1975)
- /23/ H.-G. Clerc, K.-H. Schmidt, H. Wohlfarth, W. Lang, H. Schrader, K. E. Pferdekämper und R. Jungmann, Nucl. Instr. Meth. 124, 607 (1975)
- /24/ G. Siegert, J. Greif, H. Wollnik, G. Fiedler, R. Decker, M. Asghar, G. Bailleul, J. P. Bocquet, J. P. Gautheron, H. Schrader, P. Armbruster und H. Ewald, Phys. Rev. Lett. 34, 1034 (1975)
- /25/ H. Wollnik, G. Siegert, J. Greif und G. Fiedler, Proc. 3rd Int. Confer. on Nuclei far from Stability, Cargèse 1976, CERN 76-13, S. 517, Genf 1976
- /26/ G. Siegert, H. Wollnik, J. Greif, R. Decker, G. Fiedler und B. Pfeiffer, Phys. Rev. C14, 1864 (1976)
- /27/ H. D. Schüssler, W. Grimm, M. Weber, U. Tharun, H. O. Denschlag, G. Herrmann, Nucl. Instr. Meth. 73, 125 (1969)
- /28/ H. Menke, N. Trautmann und W. J. Krebs, Kerntechnik 17, 281 (1975)
- /29/ M. Weis, Diplomarbeit, Mainz 1974
- /30/ H. Ahrens, M. Fariwar, R. Heimann, N. Kaffrell, N. Trautmann und M. Weis, wird veröffentlicht
- /31/ N. Trautmann, N. Kaffrell, H. W. Behlich, H. Folger, G. Herrmann, D. Hübscher und H. Ahrens, Radiochim. Acta 18, 86 (1972)
- /32/ R. Denig, N. Trautmann und G. Herrmann, J. Radioanal. Chem. 6, 331 (1970)
- /33/ R. Denig, N. Trautmann und G. Herrmann, J. Radioanal. Chem. 6, 57 (1970)
- /34/ R. Denig, N. Trautmann und G. Herrmann, J. Radioanal. Chem. 5, 223 (1970)
- /35/ R. J. Gehrke, R. G. Helmer und R. C. Greenwood, Nucl. Instr. Meth. 147, 405 (1977)
- /36/ R. J. Gehrke und R. A. Lokken, Nucl. Instr. Meth. 97, 219 (1971)
- /37/ J. K. Tuli, Nucl. Data Sheets, 12, 477 (1974)
- /38/ W. R. Kane und M. A. Mariscotti, Nucl. Instr. Meth. 56, 189 (1967)

- /39/ H. Otto, Programmbibliothek, Inst. f. Kernchemie, Mainz
- /40/ U. Tharun, Nucl. Instr. Meth. 69, 335 (1969)
- /41/ V. Haase, Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 73o (1968);
G. Franz, K. Sümmerer, G. Wirth, Programmbibliothek, Inst. f. Kernchemie, Mainz
- /42/ C. M. Lederer, J. M. Hollander und I. Perlmann, Table of Isotops, 6. Ed. New York 1967
- /43/ G. B. Cook und J. F. Duncan, Modern Radiochemical Practice, Oxford 1952, S. 57
- /44/ P. R. Bevington, Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences, New York 1969
- /45/ R. Ludwig, Methoden der Fehler- und Ausgleichsrechnung, Braunschweig 1969
- /46/ D. E. Troutner, R. L. Ferguson und G. D. O'Kelley, Phys. Rev. 130, 1466 (1963)
- /47/ R. M. Harbour und D. E. Troutner, J. Inorg. Nucl. Chem. 33, 1 (1971)
- /48/ J. Blachot, L. C. Carraz, P. Cavallini, A. Gadelle und A. Moussa, Proc. 2nd Symp. on Physics and Chemistry of Fission, Wien 1969, S. 8o3, IAEA Wien 1969
- /49/ K. Hubenthal, E. Monnard und A. Moussa, C. r. hebdom. Séanc. Acad. Sci. Paris B, 579 (1967)
- /50/ J. Eidens, E. Roeckl und P. Armbruster, Nucl. Phys. A 141, 289 (1970)
- /51/ P. Cavallini, J. Blachot, E. Monnard und A. Moussa, Radiochim. Acta 15, 1o5 (1971)
- /52/ W. Herzog, Dissertation, Mainz 197o
- /53/ L. R. Medsker, Nucl. Data Sheets, 12, 431 (1974)
- /54/ G. Klein, N. Kaffrell, N. Trautmann und G. Herrmann Inorg. Nucl. Chem. Lett., 11, 511 (1975) und G. Klein, Dissertation, Mainz 1978
- /55/ E. Moll, H. Schrader, G. Siegert, J. P. Bocquet, G. Bailleul, J. P. Gautheron, J. Greif, G. I. Crawford, C. Chauvin, H. Ewald, H. Wollnik, P. Armbruster, G. Fiebig, H. Lawin und K. Sistemich, Nucl. Instr. Meth. 123, 615 (1975)
- /56/ R. S. Hager und E. C. Seltzer, Nucl. Data A4, 1 (1968)

- /57/ P. Peuser, H. Otto, M. Weis, G. Nyman, E. Roeckl, J. Bonn, L. von Reisky und C. Spath, Z. Physik A, im Druck
- /58/ P. Peuser, Dissertation, Mainz, in Vorbereitung
- /59/ J. G. Cuninghame, Proceedings of the FPND-Meeting, Petten 1977, IAEA 213, Vol I, S. 351, Wien 1978
- /60/ G. Nyman, H. Otto, P. Peuser, E. Roeckl, K. Sümmerer, N. Trautmann und M. Weis, Jahresbericht Inst. f. Kernchemie 1977, S. 37, Mainz (1978)
- /61/ E. Monnand, J. Blachot, F. Schussler, J. P. Bocquet, B. Pfeiffer, G. Sadler, H. A. Selič, T. A. Khan, W. D. Lauppe, H. Lawin, K. Sistemich und die LOHENGRIK-Kollaboration, Proc. 3rd Int. Confer. on Nuclei far from Stability, Cargèse 1976, CERN 76-13, S. 477, Genf 1976
- /62/ A. H. Wapstra und K. Bos, Atomic Data and Nuclear Data Tables, 19, 175 (1977)
- /63/ W. Herzog, N. Trautmann, R. Denig und G. Herrmann, Z. Physik A276, 393 (1976)
- /64/ L. R. Medsker, Nucl. Data Sheets 10, 1 (1973)
- /65/ H. Ahrens, N. Kaffrell, N. Trautmann und G. Herrmann, Phys. Rev. C14, 211 (1976)
- /66/ J. D. Hastings, D. E. Troutner und R. L. Ferguson, Radiochim. Acta 11, 51 (1969)
- /67/ J. A. Swartout und W. A. Sullivan, Paper 118 in: C. D. Coryell und N. Sugarman (Herausgeber), Radiochemical Studies: The Fission Products, Book 2: Part V, S. 856, New York (1951)
- /68/ T. Fassbender, Diplomarbeit, Mainz 1979
- /69/ R. R. Todd, W. H. Kelley, F. M. Bernthal und W. C. McHarris, Nucl. Data Sheets 10, 47 (1973)
- /70/ J. F. Wright, W. L. Talbert und A. F. Voigt, Phys. Rev. C12, 572 (1975)
- /71/ R. L. Auble, R. R. Todd, L. E. Samuelson, W. H. Kelley und W. C. McHarris, Nucl. Data Sheets 19, 1 (1976)
- /72/ G. Tittel, Jahresbericht, Inst. f. Kernchemie 1977, S. 12 (1978)
- /73/ K. Sümmerer, N. Kaffrell, H. Otto, P. Peuser und N. Trautmann, Z. Physik, A287, 287 (1978)
- /74/ K. Sümmerer, N. Kaffrell und N. Trautmann, Z. Physik A273, 77 (1975)
- /75/ W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig und H. Münzel, Karlsruher Nuklidkarte, 4. Aufl. 1974, Stuttgart 1974

- /76/ J. W. Grüter, G. Sadler, K. Sistemich, W. Borgs und H. Lawin, in H. P. Blok und A. E. L. Dieperink (Herausgeber), Proc. Int. Conf. on Nuclear Structure and Spectroscopy, Amsterdam, Vol. 1, S. 89 (1974)
- /77/ N. Kaffrell, priv. Mitteilung
- /78/ N. Kaffrell, G. Tittel, N. Trautmann, H. Ahrens, J. P. Bocquet, B. Pfeiffer, E. Monnard und F. Schussler, Jahresbericht Inst. f. Kernchemie, Mainz 1975, S. 63 (1976)
- /79/ A. C. Wahl, R. L. Ferguson, D. R. Nethaway, D. E. Troutner und K. Wolfsberg, Phys. Rev. 126, 1112 (1962)
- /80/ W. H. Burgus, J. D. Knight und R. J. Prestwood, Phys. Rev. 79 104 (1950)
- /81/ D. E. Troutner, Dissertation, Washington 1959 (zitiert nach /79/)
- /82/ R. Stippler, F. Münnich, H. Schrader, J. P. Bocquet, M. Asghar, G. Siegert, R. Decker, B. Pfeiffer, H. Wollnik, E. Monnard und F. Schussler, Z. Physik A284, 95 (1978)
- /83/ L. R. Medsker und H. T. Fortune, Phys. Lett. 58B, 297 (1975)
- /84/ B. Singh, P. J. Tivin und H. W. Taylor, J. Phys. G2, 93 (1976)
- /85/ H. Gäggeler und H. R. von Gunten, Phys. Rev. C17, 172 (1978)
- /86/ T. Kaiser, Dissertation, Bern 1977
- /87/ T. Kaiser und H. R. von Gunten, J. Inorg. Nucl. Chem. 40, 377 (1978)
- /88/ L. R. Medsker, Nucl. Data B8, 599 (1972)
- /89/ A. Siivola und G. Graeffe, Nucl. Phys. A109, 369 (1968)
- /90/ G. Graeffe und A. Siivola, Nucl. Phys. A109, 380 (1968)
- /91/ W. H. Walker, AEC Report No. AECL-4704, (1974)
- /92/ I. F. Croall, J. Inorg. Nucl. Chem. 16, 358 (1961)
- /93/ S. F. Mughabghab und D. I. Garber, Neutron Cross Sections, Vol. 1, BNL 325 (1973)
- /94/ A. C. Wahl, A. E. Norris, R. A. Rouse und J. C. Williams, Proc. 2nd Sympos. Physics and Chemistry of Fission, Wien 1969, S. 813, Wien 1969
- /95/ M. R. Spiegel, Theory and Problems of Statistics, New York (1961)

- / 96/ S. Brandt, Statistische Methoden der Datenanalyse, Mannheim
- / 97/ A. C. Wahl, Beitrag zum FPDN-Meeting, Petten 1977, INDC (NDS)-Report: Annexes and Selected Contributions to Review Papers', S. 215
- / 98/ J. V. Kratz und G. Herrmann, Proc. 3rd Sympos. Physics and Chemistry of Fission, Rochester 1974, S. 95, Wien 1974
- / 99/ K.-L. Kratz, Radiochim. Acta, 25, 1 (1978)
- /100/ R. Brissot, J. Crangon, C. Ristori, J. P. Bocquet und A. Moussa Nucl. Phys. A255, 461 (1975)
- /101/ J. Chaumont, Thèse, Orsay 1970; auch zitiert in /94/
- /102/ K. D. Wünsch und H. Wollnik, Contribution to the ISOL-Workshop, Brookhaven 1977, unveröffentlicht
- /103/ R. Naeumann, H. Folger und H. O. Denschlag, J. Inorg. Nucl. Chem. 34, 1785 (1972)
- /104/ W. Rudolph, K.-L. Kratz und G. Herrmann, J. Inorg. Nucl. Chem. 39, 753 (1977)
- /105/ M. M. Fowler und A. C. Wahl, J. Inorg. Nucl. Chem. 36, 1201 (1974)
- /106/ H. Meixler, Jahresbericht Inst. f. Kernchemie, Mainz 1975, S. 113 (1976)
- /107/ G. Fischbach und H. O. Denschlag, Jahresberichte Inst. f. Kernchemie, Mainz 1975, S. 108 (1976); 1976, S. 105 (1977), 1977, S. 102 (1978); und G. Fischbach, Dissertation Mainz, in Vorbereitung
- /108/ G. Siegert, J. Greif, H. Wollnik, R. Decker, G. Fiedler, W. Kaiser und B. Pfeiffer, DPG-OePG-Tagung Kernphysik, Baden b/Wien 29.3.-2.4.76 und Internal Scientific Report, ILL Grenoble, Okt. 1975
- /109/ W. Reisdorf, J. P. Unik, H. C. Griffin und L. E. Glendenin, Nucl. Phys. A177, 337 (1971)
- /110/ H. Wohlfarth, W. Lang, H.-G. Clerc, H. Schrader, K.-H. Schmitt und H. Dann, Phys. Lett. 63B, 275 (1976)
- /111/ V. M. Strutinsky, Nucl. Phys. A95, 420 (1967)
- /112/ A. R. deL Musgrove, J. L. Cook und G. D. Trimble, Proceedings of a Panel on Fission Product Nuclear Data, Bologna 1973, IAEA, Vol. II, S. 163, Wien (1974)
- /113/ S. Amiel und H. Feldstein, Phys. Rev. C11, 845 (1975)

- /114/ J. Terrell, Phys. Rev. 127, 880 (1962)
- /115/ B. L. Tracy, J. Chaumont, R. Klapisch, J. M. Nitschke, A. M. Poskanzer, E. Roeckl und C. Thibault, Phys. Rev. C5, 222 (1972)
- /116/ S. L. Whetstone, Phys. Rev. 114, 581 (1959)
- /117/ G. Herrmann, Habilitationsschrift, Mainz 1961
- /118/ H.O.Denschlag und S. M. Qaim, Z. Naturforsch. 24a, 2000 (1969)
- /119/ A. A. Delucchi und A. E. Greendale, Phys. Rev. C1, 1491 (1970)
- /120/ W. J. Swiatecki und S. Björnholm, Physics Reports 4, 325 (1972)
- /121/ M. M. Hoffman, Phys. Rev. 133B, 714 (1964)
- /122/ V. M. Strutinsky, Sov. Phys. (JETP) 10, 613 (1960)
- /123/ P. Armbruster, F. Hossfeld, H. Labus und K. Reichelt, Proc. 2nd Sympos. Physics and Chemistry of Fission, Wien 1969, S. 545, Wien 1969
- /124/ J. B. Wilhelmy, E. Cheifetz, R. C. Jared, S. G. Thompson, H. R. Bowman und J. O. Rasmussen, Phys. Rev. C5, 2041 (1972)
- /125/ H. Maier-Leibnitz, H. W. Schmitt und P. Armbruster, Proc. 1st Sympos. Physics and Chemistry of Fission, Salzburg 1965, Vol. 2, S. 143, Wien 1965
- /126/ D. C. Aumann und D. Weismann, J. Inorg. Nucl. Chem. 40, 1611 (1978) und D. Weismann, Dissertation, München 1977
- /127/ D. G. Sarantites, G. E. Gordon und C. D. Coryell, Phys. Rev. 138, B 353 (1965)
- /128/ D. C. Aumann, W. Gückel, E. Nirschl und H. Zeising, Phys. Rev. C16, 254 (1977)
- /129/ N. Imanishi, I. Fujiwara und T. Nishi, Nucl. Phys. A263, 141 (1976)
- /130/ J. O. Rasmussen, W. Nörenberg und H. J. Mang, Nucl. Phys. A136, 465 (1969)
- /131/ M. Zielinska-Pfabé und K. Dietrich, Phys. Lett. 49B, 123 (1974)
- /132/ K. Dietrich und M. Zielinska-Pfabé, eingereicht in Annals of Physics (1978)
- /133/ J. R. Huizenga und R. Vandenbosch, Phys. Rev. 120, 1305 (1960)
- /134/ R. Vandenbosch und J. R. Huizenga, Phys. Rev. 120, 1313 (1960)

- /135/ H. Warhanek und R. Vandenbosch, J. Inorg. Nucl. Chem. 26, 669 (1964)
- /136/ D. C. Aumann und W. Gückel, Phys. Rev. C16, 160 (1977)
- /137/ J. R. Huizenga und G. Igo, Nucl. Phys. 29, 462 (1962)
- /138/ D. G. Madland und T. R. England, Nucl. Sci. Eng. 64, 859 (1977) und Report LA-6595-Ms (1976)
- /139/ G. Paffrath, Dissertation, Mainz 1976
- /140/ H. O. Denschlag, Proceedings of the FPND-Meeting, Petten 1977 IAEA-213, S. 421, Wien 1978
- /141/ W. Rudolph, Dissertation, Mainz 1976
- /142/ P. O. Strom, G. R. Grant und A. C. Pappas, Can. J. Chem. 43, 2493 (1965)
- /143/ R. W. Parsons und H. D. Sharma, J. Inorg. Nucl. Chem. 36, 2392 (1974)
- /144/ C. D. Coryell, H. N. Erten, P. K. Hopke, W. B. Walters, R. Dams und H. C. Griffin, Nucl. Phys. A179, 689 (1972)
- /145/ E. Monnard, J. Blachot, F. Schussler, J. P. Bocquet, B. Pfeiffer, G. Sadler, H. A. Selič, T. A. Khan, W. D. Lauppe, H. Lawin und K. Sistemich, Proc. 3rd Int. Confer. on Nuclei far from Stability, Cargèse 1976, CERN 76-13, S. 477, Genf 1976
- /146/ R. W. Peelle und F. C. Maienschein, Phys. Rev. C3, 373 (1971)
- /147/ H. Nifenecker, C. Signarbieux, M. Ribrag, J. Poitou und J. Matuszek, Nucl. Phys. A189, 285 (1972)
- /148/ T. D. Thomas und J. R. Grover, Phys. Rev. 159, 980 (1967)
- /149/ W. Hering, C. Lauterbach und W. Trautmann, Vortrag a. d. Frühjahrstagung der DPG, Heidelberg 1978, in Verhandl. DPG (VI) 13, E6.7 (1978)
- /150/ K.-L. Kratz, W. Rudolph, H. Ohm, H. Franz, G. Herrmann, C. Ristori, J. Crancon, M. Asghar, G. I. Crawford, F. M. Nuh und S. G. Prussin, Phys. Lett. 65B, 231 (1976)
- /151/ A. A. Shihab-Eldin, W. Halverson, F. M. Nuh, S. G. Prussin, W. Rudolph, H. Ohm, K.-L. Kratz, Phys. Lett. 69B, 143 (1977)

Lebenslauf

- 1947 wurde ich am 6. März in Kaiserslautern als erstes Kind von Dr. med. Ernst Weis und seiner Frau Trudl, geb. Seeberger, geboren
- 1953 Einschulung in die Volksschule meiner Heimatstadt
- 1958 Aufnahmeprüfung und Eintritt ins Staatl. Altsprachliche Gymnasium Kaiserslautern
- 1966 Reifeprüfung und Immatrikulation für das Studium der Chemie an der Johannes Gutenberg Universität, Mainz
- 1971 Vordiplomprüfung
- 1973 Diplomchemiker-Hauptprüfung und Beginn einer Diplomarbeit am Institut für Kernchemie der Universität Mainz
- 1974 Beendigung der Diplomarbeit und Beginn einer Dissertation bei Prof. H. O. Denschlag
- 1974 ab November Assistentenstelle des Fachbereichs Chemie
- seit 1973 verheiratet mit Angela Weis, geb. Wessel-Therhorn, zwei Kinder

Herrn Prof. Dr. H. O. Denschlag danke ich sehr herzlich für die Überlassung des Themas sowie für viele anregende Diskussionen und das stete Interesse an dieser Arbeit.

Für viele Gespräche, Hilfen und Hinweise danke ich den Herren Prof. Dr. G. Herrmann, Prof. Dr. N. Kaffrell, Dr. N. Trautmann, Dr. K.-L. Kratz und Dipl. Chem. G. Fischbach.

Die Unterstützung durch Herrn R. Heimann bei einigen Experimenten sei ebenfalls dankbar anerkannt.

In vielen Fällen halfen die Mitarbeiter der mechanischen und elektronischen Werkstätten, Schwierigkeiten in der Vorbereitung und Durchführung von Experimenten zu beseitigen. Hierfür gilt ihnen mein besonderer Dank.

Weiterhin sei all denen gedankt, die hier ungenannt bleiben, aber dennoch zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Nicht zuletzt schulde ich den Herren Dipl. Phys. H. Otto und Dipl. Phys. P. Peuser Dank für das anregende Arbeitsklima während unserer Zeit in einem gemeinsamen Arbeitszimmer.

Für die finanzielle Unterstützung danke ich dem Bundesministerium für Forschung und Technologie.

